

Tartu Ülikool

Loodus- ja tehnoloogiateaduskond

Kogu Eestit katva gaasiliste saasteainete ja tahma mõõtmiste võrdlus mudeli SILAM tulemustega

Magistritöö keskkonnatehnoloogia erialal

Ketlin Reis

Juhendajad: Marko Kaasik, PhD

Veljo Kimmel, PhD

Tartu 2013

Sisukord

Sissejuhatus	3
1 Mõõdetavad saasteained	4
2 Saasteainete levik ja eemaldumine atmosfäärist.....	9
2.1 Meteoroloogilised tegurid.....	9
2.2 Saasteainete eemaldumine	10
3 Õhusaaste seire	14
4 Modelleerimine	17
5 Metoodika	21
6 Tulemused	24
I mõõtmisperiood 13.02 – 26.02	24
II mõõtmisperiood 14.05 – 27.05	29
III mõõtmisperiood 27.08 – 09.09	33
IV mõõtmisperiood 19.11 – 03.12	37
7 Arutelu ja analüüs.....	42
Tänuavaldused	47
Kokkuvõte.....	47
Summary	499
Kirjandus.....	50
LISAD.....	544

Sissejuhatus

Õhus olevad inimtekkelistest ja looduslikest allikatest pärinevad ained kahjustavad kõrgetel kontsentratsioonidel inimeste tervist ja keskkonda. Õhusaaste ohjamiseks on tarvis teadmisi saasteainete allikatest, emissioonidest, leviku- ja eemaldumisprotsessidest ja atmosfääris toimuvatest protsessidest. Seda informatsiooni on võimalik hankida läbi õhusaaste seire, kasutades seirejaamade võrgustikku ja arvutitel põhinevaid mudeleid, mis võimaldavad ennustada pakutud ohjamismeetodiga kaasnevat mõju. Sellised mudelid vajavad seireandmeid ja seetõttu viiakse õhusaaste mõõtmisi ja mudelarvutusi läbi tihtipeale paralleelselt.

Õhusaaste seirevõrk on Eestis ebaühtlane nii territooriumi kaetuse kui ka erinevate asustuse tüüpide ja tiheduste mõttes: ühtegi jaama ei ole väikelinnades ega alevites, Lõuna-Eestis puuduvad maafooniaamad, erinevat tüüpi jaamu linnapiirkondades on vaid Tallinnas. Mõõtmispunktide valiku eesmärgiks on olnud pigem inimeste tervise riskitaseme kindlaks tegemine kui saasteainete geograafilise leviku mõistmine.

Antud töös on 9 seirejaama NO₂, SO₂ ja PM_{2.5} mõõtmistulemustele lisatud passiivsete kogujatega läbi viidud NO₂, SO₂, NH₃ ja O₃ mõõtmised ja filtri baasil tahmamõõtmisega läbi viidud tahma mõõtmised 26 punktis üle Eesti. Mõõtmiskohad on valitud eesmärgiga katta Eesti nii geograafiliselt kui ka erinevate asukohatüüpide lõikes. Vaatluse all on 2012. aasta iga aastaaja kaks nädalat, mis vastab pistelise seire ajalise kaetuse Euroopa Liidu miinimumnõuetele.

Võrreldes mõõtmistulemusi reaajas töötava mudeliga SILAM, saab peaaegu kogu Eestit hõlmavat teavet mudeli täpsuse kohta pikaajaliste keskmiste saastetasemete prognoosimisel. See on vajalik mõistmaks kui õigesti suudab mudel prognoosida saastetasemeid erinevates Eesti osades, erineva linnalisuse-maalisuse ja merelisuse-mandrilisusega aladel. Ilmnevad mudeli ja mõõtmise erinevused võimaldavad mõista, millised osad mudelist ja saasteallikate andmebaasist vajavad täiustamist, et tegelikku olukorda täpsemalt hinnata ja prognoosida.

Töö eesmärgiks on:

- Valideerida mudeli SILAM NO₂, SO₂, NH₃, O₃ ja PM_{2.5} arvutustulemusi geograafiliselt esinduslike mõõtmistulemuste kaudu;
- Mudeli parandussoovituste esitamine Eesti olude täpsemaks arvessevõtmiseks.

1 Mõõdetavad saasteained

Õhus olevad ained pärinevad nii looduslikest kui ka antropogeensetest allikatest (Seinfeld & Pandis, 2006). Tausta kontsentratsiooni moodustavad pika elueaga inimtekkelised ained ja looduslikest allikatest tulenevad ained (IUPAC). Tavapärasest kõrgemad heitkogused on üldiselt tingitud inimtegevusest. Olukorda, kus inimtegevuse tagajärjel tekkinud ainete kontsentratsioon on ümbritsevast normaalsest tasemest sedavõrd palju kõrgem, et tekitab arvestatavat mõju inimestele, loomadele, taimestikule või materjalidele, nimetatakse õhusaasteks (Seinfeld & Pandis, 2006).

Kõrgetel kontsentratsioonidel on NO_2 -l, SO_2 -l, NH_3 -l, O_3 -l ja tahmal olulised mõjud nii looduskeskkonnale kui ka inimeste tervisele. Inimese tervise ja keskkonna kaitseks on Keskkonnaministri 15. juuli 2011. a määrusega nr 43 kehtestatud Eestis välisõhu saastetasemete piirväärtused. Nendest piirväärtustest kinni pidamiseks on tarvis teada, millistest allikatest saasteained pärinevad ning mis nendega juhtub pärast välisõhku sattumist. Viimasest on juttu järgmises peatükis.

Lämmastikdioksiid (NO_2)

Lämmastikdioksiid kuulub keemiliselt aktiivsete gaaside – lämmastikoksiidide (NO_x -de) perekonda (EPA United States b). NO_2 tekib valdavalt sekundaarse saasteainena inimtekkeliste või looduslike lämmastikku sisaldavate ühendite oksüdeerumisel (WHO Europe, 2006).

Peamine tekkeviis (Past *et al.*, 1997):



Olenevalt troposfääri tingimustest (enamasti öösiti) võib reaktsioon 2 olla ebaolulise tähtsusega ja NO reageerimine NO_2 -ks toimub valdavalt O_3 abiga (Jenkin & Clemitshaw, 2000):



Toatemperatuuril tekkinud NO reageerib täielikult NO_2 -ks. Kõrgematel temperatuuridel võib NO kontsentratsioon ületada NO_2 kontsentratsiooni (WHO Europe, 2006).

NO_2 allikaks on peamiselt mootorsõidukite heitgaasid ja paiksed allikad nagu elektrijaamad ja katlamajad (EPA United States b). Looduslikest allikatest on oluliseim biomassi põlemine (Seinfeld &

Pandis, 1998). Samas on palju allikaid veel teadmata, mis teeb NO₂ kontsentratsioonide täpse ennustamise keeruliseks (Bradshaw *et al.*, 2000).

Eestis on kõige suuremad NO₂ sisaldused tihedalt asustatud piirkondades ja mida madalam on asustustihedus, seda vähem leidub NO₂ õhus. Lämmastikoksiidi kontsentratsioon on kõrgem külmal ajal ja madalam soojal. Kuigi suurema osa lämmastiku oksiididest tekitab autotransport, on ka kütmise osa arvestatav. Teisalt segavad konvektsioonivoolud suvel õhu vertikaalselt paremini läbi, mis võib samuti vähendada maapinnalähedasi kontsentratsioone (Sõukand, 2013). Eestis kehtiv lämmastikdioksiidi sisalduse piirväärtus välisõhus on kalendriaasta keskmisena 30 µg/m³ ja ühe tunni keskmisena 200 µg/m³, viimast on lubatud ületada kuni 18 korral kalendriaasta jooksul (RT I, 12.07.2011, 3).

Lämmastikdioksiid võib ärritada kopse ja suurendada haigestumist hingamisteede haigustesse. Atmosfääris moodustub NO₂-st söövitav lämmastikhape HNO₃, samuti mürgised orgaanilised nitraadid. NO₂ omab olulist rolli ka reaktsioonides, mis toodavad troposfääriosooni ja fotokeemilist sudu. Lisaks annab NO₂ õhule pruunikat värvust (EPA United States b).

Vääveldioksiid (SO₂)

Vääveldioksiid on enamalt jaolt primaarne õhusaasteaine ehk ta satub õhku sellisel kujul otse saasteallikatest. Põhiliseks SO₂ inimtekkeliseks allikaks on väävliit sisaldavate fossiilsete kütuste, eelkõige kivisöe ja nafta põletamine (WHO Europe, 2006). Looduses on vääveldioksiidi allikaid suhteliselt vähe. Olulisemad neist on vulkaanid ja metsatulekahjud, kuid ka mereorganismid, sest SO₂ on väävliit sisaldava orgaanilise aine lagunemise lõpp-produkt (Wayne, 2000).

Atmosfääris sisalduvast vääveldioksiidist umbes pool on looduslikku päritolu, kuid arenenud maades ületab kütuste põletamise tagajärjel tekkiv SO₂ tunduvalt looduslikku emissiooni (Sõukand, 2013).

Eestis pärineb SO₂ põhiliselt kaugkandest ning selle tase õhus on valdavalt madal ja suhteliselt ühtlane. Kõrgenenud kontsentratsioone esineb põlevkivi, rasket kütteõli või põlevkiviõli kasutavate ettevõtete ja sadamate lähedal – merelaevade diislikütuses on seni lubatud suuremad väävlisisaldused, kui maismaal tarvitatavas. Tõenäoliselt talvise kütteperioodi tõttu ilmneb vääveldioksiidi tasemetes aastane käik, kus suvel on kontsentratsioon madalam ning talvel kõrgem (Sõukand, 2013). Eestis kehtiv vääveldioksiidi sisalduse piirväärtus välisõhus on 24 tunni keskmisena 125 µg/m³ ja ühe tunni keskmisena 350 µg/m³, mida on lubatud ületada vastavalt kuni kolmel ja 24 korral aastas (RT I, 12.07.2011, 3).

Kõrgete SO₂ kontsentratsioonidega kokkupuutumisest tingitud terviseprobleemide hulka kuuluvad mõju hingamisele, hingamisteede haigused, muutused kopsu kaitsemehhanismides ja südamehaiguste süvenemine. SO₂ on eelduseks ka sulfaatide tekkele, mis on seotud järvede ja jõgede hapestumisega, ehitiste ja mälestiste kiirendatud korrosiooniga ja halva nähtavusega (EPA United States b).

Ammoniaak (NH₃)

Ammoniaak on sõltuvalt piirkonnast väga muutliku kontsentratsiooniga lisandgaas, mis moodustub peamiselt orgaanilise aine anaeroobsel lagunemisel.

Tänapäeval paiskub NH₃ õhku suures osas inimtekkelistest allikatest: loomakasvatus (uriinis sisalduva karbamiidi lagunemine), heitvee puhastusseadmed, orgaanilise ja mineraalväetise kasutamine, kohalik puiduküte (Seinfeld & Pandis, 1998).

Põhiosa Eestis õhkupaisatavast NH₃ -st pärineb loomakasvatusest. Umbes 30 % pärineb looduslikest allikatest: looduslikud mere- ja maismaakooslused (Seinfeld & Pandis, 1998). Eestis kehtiv ammoniaagi sisalduse piirväärtus välisõhus on 24 tunni keskmisena 40 µg/m³ ja ühe tunni keskmisena 200 µg/m³ (RT I, 12.07.2011, 3).

NH₃ aastane käik vastab õhutemperatuuri käigule, arvestades lagunemisprotsesside inertsi. Kontsentratsioonid õhus on talvel madalad, sest lagunemisprotsessid on peatunud. Kõige intensiivsemad on need aga suve lõpus (Sõukand, 2013).

Ammoniaagil on sissehingamisel ärritav toime. Lisaks võib NH₃ alandada vere hapnikusisaldust ja seeläbi mõjutada ainevahetuslikke funktsioone (Issley, Lang). NH₃ aitab kaasa eutrofeerumisele, pinnase hapestumisele, taimede väetamisele, muutustele ökosüsteemis ning sudu ja halva nähtavuse tekkimisele linnades (Krupa, 2003). Loomafarmide lähedal võib NH₃ kontsentratsioon ületada piirväärtust (Sõukand, 2013).

Osoon (O₃)

Osooni puhul on silmas peetud troposfääriosooni, mis erinevalt stratosfääri osoonikihist kvalifitseerub saasteainena. Troposfääriosoon on äärmiselt aktiivne sekundaarne saasteaine. See tekib õhus keemilistel reaktsioonidel, milles etendab lenduvate orgaaniliste ühendite (LOÜ-de: isopreen lehtpuudest, terpeenid okaspuudest, mitmesugused inimtekkelised LOÜ-d heitgaasidest) ja lämmastikuühendite (NO_x-d) piisavate tasemete olemasolul kindlat osa päikesekiirgus (Seinfeld & Pandis, 2006).

Peamiseks osooni tekkimise reaktsiooniks troposfääris on NO_2 fotolüüs päikese kiirguse mõjul:



, kus M on kolmas liige, enamasti N_2 (Jenkin & Clemitshaw, 2000). Öösel päikese kiirgust ei ole ja seetõttu on ülekaalus osooni lagunemine. Tekke ja lagunemise sõltuvus päikesest loob osoonile kindla ööpäevase ja aastaajase muutlikkuse. Erinevalt teistest saasteainetest on O_3 kontsentratsioonid kõrgemad teatud kaugusel suurematest saasteallikatest – linnad, tööstusasulad, elektrijaamad (Seinfeld & Pandis, 1998). Pideva foonikontsentratsiooni kuni kümnekond $\mu\text{g}/\text{m}^3$ põhjustab troposfääri difundeerunud stratosfääriosoon (WHO Europe, 2006).

Eestis kehtiv osooni sisalduse piirväärtus välisõhus on 8 tunni keskmisena $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (RT I, 12.07.2011, 3).

Osooniga kokkupuutumine võib oluliselt vähendada kopsufunktsiooni ja kutsuda esile hingamisteede põletikku. Sellega käivad kaasas sümptomid nagu valu rinnus, köha, iiveldus ja kopsupais. Osoon võib kahjustada metsa ökosüsteeme ja põllumajanduskultuuride saaki (EPA United States b).

Tahm

Tahm tekib mittetäielikul põlemisel ja koosneb 99% ulatuses grafiitsest ehk mustast süsinikust (ingl. k. *black carbon* - BC) (Kikas *et al.*, 2012). Selles töös kasutatud mõõtmismeetodiga hinnatakse musta süsiniku sisaldust õhus, kuid ligilähedaste väärtuste tõttu on sünonüümina käibel mõiste „tahm“.

Ülemaailmselt on peamised tahma allikad looduse või inimese poolt tekitatud biomassi põlengud, hoonete kütmine, tööstuslikud protsessid ning transport. Transpordis on suuremad tahma tekitajad diiselmootoritega sõidukid. Bensiinimootoriga autod ja lennukid tekitavad vähem tahma (ainult ülipeeneteid osakesi), sest neis kasutatakse kergemaid kütuseid, mis täielikumalt ära põlevad (Kikas *et al.*, 2012).

Tahm emiteeritakse atmosfääri suures osas ülipeenete osakestena läbimõõduga kuni 2,5 mikromeetrit ($\text{PM}_{2.5}$) (EPA United States a). Ameerika Ühendriikides tehtud uuringute järgi moodustab tahm $\text{PM}_{2.5}$ -st 4-11%. Tahma osakaal $\text{PM}_{2.5}$ -st oleneb nii asukohast kui ka aastaajast: linnades ja talvisel perioodil on osakaal suurem (Hand *et al.*, 2011). Sellest tingituna peaksid tahma ja $\text{PM}_{2.5}$ kontsentratsioonid andma ka võrdlemisi häid korrelatsioone.

Taustaaladel mõõdetud tahma saastetasemed on tingitud kaugkandest. Linnaõhus sisalduv tahm koosneb nii kohalikest emissioonidest kui ka kaugemalt transporditud osakestest ja on seetõttu ka kõrgema kontsentratsiooniga (EPA United States, 2010).

Tüüpilised Euroopas mõõdetud tahma tasemed on mõned mikrogrammid kuupmeetris (Kikas *et al.*, 2012). Analoogseid väärtusi mõõdeti ka Eestis esimese tahmakampaania käigus 1994. aastal, mil suuremad mõõdetud väärtused olid kuni 1,5 mikrogrammi ja taustaaladel keskmiselt 0,2 mikrogrammi kuupmeetris (Kikas, 1996). Eestis kehtiv PM_{2.5} sisalduse piirväärtus välisõhus on aasta keskmisena 25 µg/m³ (RT I, 12.07.2011, 3).

Tervistkahjustavat toimet tahmal otseselt ei ole. Ohtlikud on tahmas leiduvad orgaanilised põlemisjäägid, eriti polütsüklilised aromaatsed süsivesinikud (inglise keeles *PAH – polycyclic aromatic hydrocarbons*) (Kikas *et al.*, 2012).

Grafiitne süsinik neelab rohkem valgust kui kõik teised ained ja seetõttu kahjustab tahm atmosfääri kiirgusrežiimi, õhu läbipaistvust ning nähtavust. Seega seostub tahm toodud probleemidest eeskätt kliimamuutustega, kuid on samas ka heaks indikaatoriks mistahes mittetäielikule põlemisele, mis tekitab ka muid saasteaineid. Kõrged tahmasisaldused atmosfääris näitavad suure tõenäosusega, et ka muude saasteainete kontsentratsioonid on kõrged (Kikas *et al.*, 2012).

2 Saasteainete levik ja eemaldumine atmosfäärist

Arvutu hulk aineid emiteeritakse maapinnalt ja need, mille keemiline eluiga on lühem kui aasta, hävinevad troposfääris. Antud töös käsitletavat ühendid kuuluvad just nende ainete hulka (Seinfeld & Pandis, 2006). Seetõttu võetakse vaatluse alla vaid troposfääris toimuvad protsessid. Täpsemalt umbes 1 km paksune (parasvöötmes) aluspinna lähedal olev piirkiht, mis on maapinnal paiknevate saasteallikate, inimeste ja koosluste seisukohalt esmatähtis (DiGiovanni & Fellin).

2.1 Meteoroloogilised tegurid

Meteoroloogia on tihedalt seotud õhu kvaliteediga, määrates kohalikul tasandil emiteeritud primaarsete saasteainete kontsentratsiooni, sekundaarsete saasteainete tekkimist, nende kandumist teistesse piirkondadesse ja nende lõplikku eemaldumist atmosfäärist. Isegi kui õhukvaliteedi languse põhjuseks on antropogeensed emissioonid, määrab meteoroloogia tekkinud emissioonidest tingitud probleemide ulatuse ning kus ja millal need probleemid avalduvad. Troposfääri piirkihis oleneb saasteainete hajumine suuresti temperatuuri vertikaalsest muutumisest ja tuulest (Seinfeld & Pandis, 2006).

Temperatuur

Atmosfääri vertikaalne temperatuuri profiil mõjutab enim saasteaine levikut allikast ülespoole. Kui temperatuur langeb kõrgusega aeglaselt, nimetatakse atmosfääri neutraalseks. Sellises seisundis püsib õhuosake liikumatuna. Kui atmosfääri temperatuur langeb kõrgusega kiiremini kui neutraalse atmosfääri puhul, on atmosfääri seisund labiilne (tingib jahtunud aluspind). Labiilses atmosfääris liiguvad vertikaalsed õhuvoolud nii üles kui ka alla, põhjustades saasteainete kiire segunemise (õhuvoolud tingib soojenenud aluspind). Kui temperatuur langeb aeglasemalt kui neutraalses atmosfääris või isegi tõuseb, on tegemist stabiilse atmosfääriga. See toob kaasa õhusaaste aeglase segunemise.

Saasteainete segunemise määrast oleneb nende kontsentratsioon õhus. Mida labiilsem on atmosfäär, seda kiiremini transporditakse õhulisandid saasteallikast eemale, kuid kõrgetest korstnatest pärinev saaste jõuab kiiremini maapinnale. Stabiilse atmosfääri puhul võivad saasteainete kontsentratsioonid madalatest saasteallikatest ohtlikult kõrgeks tõusta. Samas hajuvad ka kõrgetest korstnatest pärinevad ained aeglaselt ja jõuavad maapinna lähedale alles kaugel. Selle ajaga võivad need rõhtsuunas päris palju hajuda ja neist põhjustatud maksimaalsed saastetasemed võivad jääda madalamaks kui labiilsel juhul (Seinfeld & Pandis, 2006).

Lisaks võib termiline stratifikatsioon tugevalt mõjutada piirkihi paksust: väga stabiilne piirkiht võib ulatuda vaid mõnekümne meetri kõrgusele maapinnast (Nieuwstadt, 1995).

Tuul

Tuul on õhu (harilikult) pikisuunaline liikumine maapinna suhtes (Eesti Keele Instituut). Nähtust, kus õhu lisandid levivad koos õhumassiga nimetatakse adveksiooniks (Alloway & Ayres, 1993). Definitsiooni järgi transpordib adveksioon saasteaineid ilma kontsentratsioonide märkimisväärse vähenemiseta (Kukkonen *et al.*, 2012). See on kõige kiirem õhusaaste leviku viis. Maapinna lähedal on tuule kiirus harilikult mõnest meetrist sekundis kuni umbes 30 meetrini sekundis. Troposfääri ülaosas (5 - 10 km kõrgusel) ulatub tuule kiirus sageli 50 m/s, üksikjuhtudel kuni 110 m/s (Alloway & Ayres, 1993). Seega levivad näiteks tõusvate õhuvooludega kõrgemale kantud lisandid kiiremini kui maalähedases kihis, mistõttu võivad saasteained kanduda tuhandete kilomeetrite kaugusele.

Õhu liikumine maapinna lähedal on muutliku temperatuuri ja ebatasasuste tõttu tegelikult alati keeriseline ehk turbulentne (Seinfeld & Pandis, 2006). Mida tugevam on tuul, seda turbulentsem on õhk (Ahrens, 1993).

Turbulentne hajumine on ebaregulaarne ja juhuslik, mistõttu on võimatu täpselt ennustada saasteainete koguseid mistahes asukohas. Modelleerimisel tuleb lähtuda tuulekiiruse ja temperatuuri statistilistest näitjatest (keskväärtus, standardhälve jm.) konkreetses punktis (Seinfeld & Pandis, 2006).

2.2 Saasteainete eemaldumine

Gaasimolekuli keskmine eluiga atmosfääris võib jääda vahemikku sekundid kuni miljonid aastad sõltuvalt eemaldumisprotsessi efektiivsusest. Tahked osakesed ei püsi atmosfääri alumises osas üle kahe nädala. Saasteainete eemaldumine atmosfäärist toimub keemiliste reaktsioonide ja sadenemise teel (Seinfeld & Pandis, 2006).

Aine eemaldumine keemilisel teel võib toimuda kahel viisil (Boeker & Van Grondelle, 1995):

1. fotokeemiline reaktsioon, kui päikese kiirgus lõhub molekuli sidemed;
2. kahe molekuli vaheline keemiline reaktsioon, mille tagajärjel tekib uus aine (sagedasem).

Saasteainete sadenemiseks on kaks moodust (Seinfeld & Pandis, 2006):

1. kuivsadene mine, kui gaasilised või tahked ained jõuavad maapinnale ilma sademetega abita;
2. märgsadene mine, kui õhus olevad ained jõuavad maapinnale sademetega (nt vihm, lumi või udu).

Kuivsadene mist mõjutab atmosfääri turbulents, sadenevate ainete keemilised omadused ja maapinna iseloom. Kuivsadene mise määra arvutamisel võivad komplikatsioonid tekitada saasteainete maapealsed allikad. SO₂ liigub peaaegu alati ülevalt alla ja maapind on kui käsn. Samas ammoniaaki ja lämmastikoksiide võib eralduda ka pinnalt, kuhu saasteaine sadeneb. Seega peaks saasteaine püsivuse modelleerimisel arvestama ka aluspinna omadustega.

Märgsadene misel läbib saasteaine kolm etappi: sattumine kondenseerunud veega keskkonda, kokkupuude sademetega ja transport maapinnale. Sealjuures võib saasteaine igas etapis läbida keemilise muundumise ja iga etapp on pöörduv. Näiteks võib teel maapinnale vihmapiisk aurustuda ja uusi aerosooliosakesi moodustada.

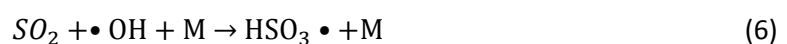
Maapinna lähedal on peamine osakeste eemaldumise viisiks kuivsadene mine. Üle 100 meetri kõrgusel domineerib tahkete osakeste puhul puhastumine sademetega. Veel oleneb kuiv- või märgsadene mise osakaal veekeskkonda sattunud aine lahustuvusest, piirkonna sademete hulgast ning maastikust ja maapinna kattest.

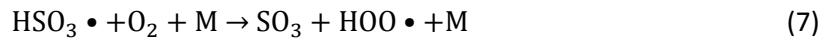
Kemikaali atmosfäärist eemaldumise kiirus on tihtipeale võrdeline selle kontsentratsiooniga – mida rohkem kemikaali on õhus, seda kiiremini see sadeneb. See kehtib üldiselt nii märg- kui ka kuivsadene mise puhul. Kuigi märgsadene mine toimub kiiremini, on kuivsadene mine pidev protsess. Seega ei tohiks kuivsadene mist saasteaine eemaldumisel atmosfäärist alahinnata (Seinfeld & Pandis, 2006).

Vääveldioksiid SO₂

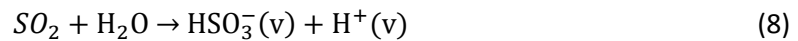
SO₂ eemaldumine toimub läbi kuiv- ja märgsadene mise ning sulfaadiks oksüdeerumise (Seinfeld & Pandis, 2006, 229). Hinnanguline keskmine eluiga on kuivsadene misel 60 tundi, märgsadene misel 100 tundi ja keemilisi reaktsioone läbides 80 tundi (Schmeling, Aldstadt, 2009).

SO₂ võib muutuda H₂SO₄-ks gaasifaasis või vesilahusena (pilvedes või udus). Gaasifaasi oksüdatsioon hõlmab OH-rühma rünnakut (Smith):





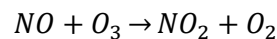
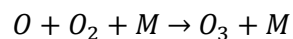
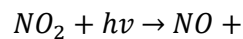
Gaasiline SO_2 lahustub vees, moodustades väävelhappe (Smith):



Lämmastikdioksiid NO_2

NO_2 eluiga on troposfääri piirkihis 1-2 päeva, troposfääri ülemises osas kuni 2 nädalat (Seinfeld & Pandis, 2006).

Atmosfääri alumises osas neelab NO_2 päikesekiirguse spektri nähtavat ja ultraviolettkiirgust. Vahemikus 300 kuni 370 nm laguneb 90% NO_2 molekulidest NO ja O molekulideks (Seinfeld & Pandis, 2006; Smith):



Seega moodustub lämmastikdioksiidi rikkas õhus päikesekiirguse mõjul osoon, lämmastikmonoksiidi rikkas aga laguneb osoon kiiresti. See ongi peapõhjus, miks osooni tasemed on kõrgemad linnakeskustest kaugemal, kus esialgselt õhku paiskunud NO on juba jõudnud oksüdeeruda NO_2 -ks.

NO_2 võivad absorbeerida veepiisad (Smith):



Gaasifaasis võib NO_2 oksüdeeruda OH -rühma mõjul (Smith):



Öösiti võib NO_2 oksüdeeruda osooni mõjul ja moodustada tugeva oksüdandi NO_3 , mis võib edasi moodustada N_2O_5 (Smith):



Hommikul läbivad mõlemad ained fotolüüsi ja tõstavad troposfääris NO_2 kontsentratsiooni (Smith):

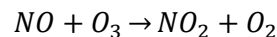


Osoon O₃

Osooni eluiga sõltub kõrgusest, laiuskraadist ja aastaajast. Eluiga on suurema veeauru hulga tõttu lühem maapinna lähedal ning Päikese tõttu suvel lühem kui talvel ja kõrgematel laiuskraadidel pikem kui madalamatel (Seinfeld & Pandis, 2006). Osoon püsib maa pinnalähedases kihis lagunemata keskmiselt 22 päeva (Sõukand, 2013).

Saasteallikate vahetus läheduses domineerib osooni lagunemine põlemisel tekkivate NO, CO jt ühendite mõjul. Lisaks on linnas sadenemine tehispindadele aktiivsem, mis vähendab seal osooni kontsentratsiooni. Kuna mere kohal on osooni eemaldumine sadenemise teel kuni 5 korda aeglasem kui maismaal, siis on osooni kontsentratsiooni gradient suunatud maismaalt merele (Seinfeld & Pandis, 1998).

Moodustudes NO₂ abiga, võib O₃ seda NO-ga reageerides ka taastoota (Smith):



Ammoniaak NH₃

Ammoniaagi peamisteks eemaldumise viisideks on kuiv- ja märgsadenemine (Schmeling). Atmosfääris olev ammoniaak laguneb küllalt kiiresti – mõne tunni kuni 5 päeva jooksul, sellepärast on ammoniaak kohalikku päritolu saasteaine. NH₃ adsorbeerub vees ning reageerib happeliste gaasidega, moodustades aerosooliosakesi (NH₄NO₃, NH₄Cl), või kuivsadeneb kohapeal taimedel, mullal või vees (Sõukand, 2013).

Tahm

Tahketel osakeste eluiga on atmosfääri alumises kihis võrdlemisi lühike – paar nädalat (Schmeling). PM_{2.5} eemaldumine toimub peamiselt märgsadenemise teel, kuna osakesed on liiga suured, et kiiresti edasi koaguleeruda difusiooni teel ja liiga väikesed selleks, et raskusjõu mõjul välja sadeneda (Seinfeld & Pandis, 2006).

3 Õhusaaste seire

Välisõhu seire eesmärgid on (Seireveeb):

- Välisõhu kvaliteedi eesmärkide määratlemine ja püstitamine, et vältida, ära hoida või vähendada kahjulikku mõju inimeste tervisele ja kogu keskkonnale;
- Välisõhu kvaliteedi hindamine Euroopa Liidu liikmesriikides ühiste meetodite abil ja ühiste kriteeriumide alusel;
- Teabe saamine välisõhu kvaliteedi kohta, et aidata võidelda õhusaaste ja selle kaasnähtuste vastu ning jälgida pikaajalisi suundumusi ja edusamme;
- Tagamine, et teave välisõhu kvaliteedi kohta tehakse kättesaadavaks üldsusele;
- Õhukvaliteedi säilitamine, kui see on juba hea, ning selle parandamine muudel juhtudel;
- Euroopa Liidu liikmesriikide koostöö soodustamine õhusaaste vähendamisel.

Välisõhu kvaliteedi seirekohustused ja jälgitavate saasteainete loend põhinevad direktiivil 2008/50/EC, selle tütar direktiivil raskmetallide jt ohtlike ainete kohta (2004/107/EC), Genfi piiriülese õhusaaste konventsiooni õhusaaste kauglevi jälgimise ja hindamise Euroopa pikaajalise koostööprogrammil EMEP ja Eesti Vabariigi välisõhu kaitse seadusel (Keskkonnainfo; Seireveeb).

Eestis on kokku üheksa riiklikku välisõhu seirejaama: kuus linnaõhu seirejaama ja kolm taustaala seirejaama, millele lisandub veel üksteist ettevõtete omaseirejaama. Seirejaamade asukohtade valikul on lähtutud põhimõttest, et jaamad kirjeldaks erinevate saastekarakteristikutega piirkondade välisõhu kvaliteeti ja asukoha valiku aluseks on Euroopa Liidu õhukvaliteedi direktiivides 2008/50/EC ja 2004/107/EC toodud kriteeriumid. Tallinna linna välisõhu seirejaamad iseloomustavad saasteallikate osatähtsust linnaõhu saastatuses - Liivalaia seirejaam iseloomustab transpordist pärinevat saastatust, Rahu seirejaam iseloomustab tööstuspiirkonna ja kohtkütte saastet ja Õismäe seirejaam iseloomustab linnaõhu foonitasemeid, mis iseloomustavad elanikkonna üldist saasteainetega kokkupuutemäära. Narva seirejaam on linnakeskkonna taustajaam ja see iseloomustab välisõhu kvaliteeti Põhja-Eesti välisõhu kvaliteedi piirkonnas. Kohtla-Järve seirejaam iseloomustab välisõhu kvaliteeti Kohtla-Järve linnastus ja näitab piirkonna tööstusettevõtete mõju välisõhu kvaliteedile. Tartus paiknev seirejaam on linnakeskkonna taustajaam ja see iseloomustab linna välisõhu kvaliteeti Lõuna-Eesti õhukvaliteedi piirkonnas (Saare *et al.*, 2012). Foonijaamades mõõdetud kontsentratsioonid annavad tihtipeale informatsiooni kaugkandest tingitud saastetasemetest. Lahemaa seirejaam asub suhteliselt hõredalt asustatud metsasel alal, Saarejärve tihedalt asustatud põllumajanduspiirkonnas ja Vilsandi keset rannikumerd (Kaasik, Sõukand, 2012). Nimetatud jaamade seireandmeid kasutatakse ka antud töös.

Olemasolev seire tagab seadusandluses esitatud minimaalsed seirenõuded (Keskkonnaministeerium). Õhusaaste seirevõrk on Eestis ebaühtlane nii territooriumi kaetuse kui ka erinevate asustuse tüüpide ja tiheduste mõttes: enamus seirejaamu asuvad Põhja-Eestis, ühtegi jaama ei ole väikelinnades ega alevikes, Lõuna-Eestis ei ole maafooniaamu, erinevat tüüpi jaamu linnapiirkondades on vaid Tallinnas. Seetõttu on oluline saada täiendavat informatsiooni piirkondade kohta, kus pidevmõõtmisi ei teostata.

Võrreldes teiste Maa sfääride ja keskkondadega muutub atmosfääri seisund õhu suurema liikuvuse tõttu kiiremini, nii peab ka seire kiirelt toimima. Ilmavaatluste üldlevinud samm on 3 h, pideva õhuseire jaamad registreerivad kontsentratsioone õhus mitmel korral tunnis, sageli mitmel korral minutis, väljundandmetena antakse tavaliselt tunnikeskmsed. Sel põhimõttel töötab ka Eesti riiklik õhusaaste seiresüsteem (EKUK).

Antud töös käsitletavate ainete mõõtmisi teostatakse riiklikes seirejaamades järgmisi standardeid või meetodeid järgides (Seireveeb):

- SO₂ EN 14212:2005 „Ultravioletfluorestsentsil põhinev standardmeetod vääveldioksiidi kontsentratsiooni mõõtmiseks”;
- NO₂ EN 14211:2005 „Kemoluminestsentsil põhinev standardmeetod lämmastikdioksiidi ja lämmastikmonooksiidi kontsentratsiooni mõõtmiseks”;
- O₃ EN 14625:2005 „Ultravioletfotomeetrial põhinev standardmeetod osooni kontsentratsiooni mõõtmiseks”;
- PM_{2.5} beeta-kiirguse absorptsioon;
- Ammoniaagi kontsentratsiooni määramine välisõhust toimub põhimõttel, et ammoniaak seotakse kilekemosorbendiga, mida analüüsitakse laboris fotokolorimeetriliselt.

Pidevat seiret on vaja piirnormide ületamiste tuvastamiseks. Väikemates linnades, kus saastetasemed on selgelt allpool piirnorme, võib teha pistelist seiret. Pisteliste mõõtmiste korral loetakse andmed valideerituks, kui tehakse üks kontrollmõõtmine nädalas, mis on ühtlaselt jaotatud üle kogu aasta või mõõtmised kaheksal nädalal, mis on ühtlaselt jaotatud üle kogu aasta (RT I, 12.07.2011, 1).

Välisõhu kvaliteedi kaardistamiseks kasutatakse laialdaselt niinimetatud passiivseid proovivõtjaid, kus saasteaine sidumist absorbendiga limiteerib saasteaine difusiooniprotsessi kiirus (EKUK, 2006). Passiivseid kogujaid on odavad ja töötavad ilma elektrita. Seetõttu saab neid kasutada paljusid punkte hõlmavatel välimõõtmistel, ka foonialadel. Passiivne koguja ei võimalda registreerida

tippsaastetasemeid ja lühiajalisi muutusi, kuid annab küllaltki usaldusväärselt keskmised kontsentratsioonid ekspositsioonaja jooksul (Sõukand, 2013).

Passiivsete kogujatega määratud gaasi tulemused sõltuvad oluliselt ilmastikutingimustest. Kasutatud meetod võtab arvesse õhutemperatuuri ja -rõhu, tuule suund ja kiirus on aga jäetud arvesse võtmata. Viimastest näitajatest võib sõltuda, kui palju õhku jõuab kandjani. Arvatavasti ongi mõned oodatavast erinevad mõõtmistulemused selle asjaoluga seletatavad (EKUK, 2011).

Tahma pisteliseks mõõtmiseks kasutatakse tihti filtriga optilisi instrumente, kuna need on võrdlemisi odavad, kergesti saadavad ja lihtsasti kasutatavad. Filtri baasil töötavad seadmed mõõdavad tahkete osakestega kaetud filtrist läbi tuleva valguse hulka (EPA United States, 2010).

Antud meetodi kasutamisel eeldatakse, et tahmaosakesed on ainsad, mis valgust neelavad. Kõik ülejäänud osakesed neelavad või hajutavad tühise osa valgusest võrreldes tahmaosakestega ja ei mõjuta kiirguse nõrgenemist filtrist läbiminekul (EPA United States, 2010). See meetod võib anda ebaõiget infot tahma kohta nendel Eestis harvadel juhtudel, kui atmosfääris on suurel hulgal teisi valgust neelavaid osakesi, millest on teada Fe_2O_3 sisaldav pruun tolmu ja biomassi põlengutes tekkiv huumhapet sisaldav pruun aerosool (Kikas *et al.*, 2012).

Rahvusvahelisel tasandil on kokku lepitud, et kõik välisõhuproovid võetakse kuni 2 meetri kõrguselt maapinnast. See võimaldab saadud tulemusi omavahel võrrelda (Keskkonnaministeerium).

4 Modelleerimine

Modelleerimisel on saasteainete pidevseire ees mitmeid eeliseid (Colls, 2002):

- võimalus prognoosida saasteainete leviku suunda ja kiirust ning seeläbi saada kõrgema ruumilise lahutusega õhu kvaliteedi näitajaid erinevatel ajahetkedel;
- võimalus saada informatsiooni saasteainete allikate kohta;
- tihtipeale on modelleerimine mõõtmistest odavam.

Rahvusvahelisel tasandil omandavad mudelarvutused järjest suuremat autoriteeti seadusandja silmis. Euroopa Liidu õhu kaitsele suunatud direktiivid näevad mudelitele ette järjest rohkem rakendusi ning senisest suuremat kasutamist otsuste tegemisel ja kehtestavad mudelitele detailsemaid nõudmisi (Directive 2008/50/EC).

Soome Meteoroloogia Instituudi poolt arendatud mudel SILAM simuleerib õhusaaste levikut globaalsel (üle 5000 km), lokaalsel (mõni kuni mõnikümmend km) ja mesomastaabil (sajad kuni tuhanded kilomeetrid) võrgusammuga kuni 1 km. Mudelit saab kasutada nii üksiksündmuste kui ka pikemate perioodide ennustamiseks, jooksvateks prognoosideks ja emissioonide võimalike arengukäikude uurimiseks (SILAM). Läbi saab viia hajumisarvutused nii siis, kui allikad on teada, kui ka õhus detekteeritud saasteaine päritolu kindlaks tegemiseks (Kukkonen *et al.*, 2012).

Hetkel kasutatakse SILAMit Soomes ja Leedus peamise õhusaaste mudelina, koostades igapäevaselt Soome ja Euroopa tasandi õhukvaliteedi ennustusi järgmiseks 54 ja 72 tunniks. Teadustöodes kasutatakse SILAMit Eestis, Venemaal, Leedus ja Hispaanias. SILAM kasutab õhusaaste leviku modelleerimiseks kahe alternatiivvariandina otsest numbrilist lahenduskeemi ehk Euleri meetodit ja Lagrange'i osakeste ehk Monte Carlo meetodit. Mudelis rakendatud põhimõtted võimaldavad käsitleda praktiliselt kõiki enamlevinud saasteaineid omavaheliste vastasmõjudega (SILAM).

SILAM on suuteline arvutama hajumist järgmiste saasteainete kohta (SILAM):

- kuni 496 erinevat radionukliidi koos nende radioaktiivse lagunemise ja teisendustega;
- inertsed aerosoolid;
- bioloogiline materjal (õietolm);
- keemiliselt aktiivsed gaasilised ühendid, mis on läbinud erineva keerukusastmega reaktsioone.

Süsteem aktsepteerib laias ulatuses osakeste suurusi. Iga suuruse vahemikku on integreeritud osakeste liikumise omapära ja aluseks on võetud osakeste arodünaamiline diameeter. Lisaks arvestab

SILAM tulekahjude tekitatud aineid, mille ülemaailmsete allikate kohta on võimalik informatsiooni saada tänu tulekahjusid tuvastavale satelliitvaatluste töötlussüsteemile (Sofiev *et al.*, 2009).

SILAM vajab õhusaaste mudelile tavapäraseid sisendandmeid (SILAM):

- Meteoroloogilised andmed. Peamisteks allikateks on HIRLAMi ja Euroopa Keskuse (ECMWF) mudelite prognoosid ja arhiivid. Need on raamistikuks informatsiooni omastamisel praktiliselt igast allikast, milles on väljad pakitud GRIB või NetCDF formaati;
- Ääretingimused. Võimalik hankida SILAMi väljadest või mõnest teisest globaalse või mesomastaabi õhusaaste mudelist. Ääretingimused on vaikimisi saadaval GEMS projektist (Global and regional Earth-system Monitoring using Satellite and in-situ data);
- Informatsioon maakasutuse kohta. Maakasutuse andmed ja biogeensete heitmete potentsiaalid olenevad maakattest. SILAM kasutab USGS klassifikatsiooni (http://edc2.usgs.gov/glcc/globdoc2_0.php);
- Emissioonide allikad. Antropogeensed heitkogused on saadud erinevatest infoallikatest olenevalt vajalikust võrgusammust. Kõige sagedamini kasutatakse lokaalse hajuvuse arvutamiseks TNO-MACC arendatud heitmete andmebaasi. Detailsemate uuringute jaoks on soovitatav kasutada kohalikku emissioonide andmebaasi.

Meteoroloogiliste andmete hankimisviisi järgi on SILAM liigitatud nn *off-line* modelleerimissüsteemide hulka. See tähendab, et õhusaaste mudel käitatakse peale numbrilise ilmaprognoosi mudeli käitamise lõppu. Sellel on võrreldes *on-line* süsteemiga vähem võimalusi (näiteks ei saa arvestada õhulisandite tagasimõju reaajas ilmale päikesekiirguse neelamise, pilvede moodustamis jms. tõttu), kuid mõningastel juhtudel tagab see kiirema tulemuse, mis on vajalik näiteks hädaolukordades (Kukkonen *et al.*, 2012).

Kuna SILAMi väljatöötamisel oli peamiseks eesmärgiks süsteemi paindlikkus, võib kõiki teisi andmeid peale meteoroloogiliste esitada mudeli kasutaja. Selle tulemusena sobib mudel erinevate õhusaaste hajumisarvutuse jaoks, mistõttu on peamiseks sihtgrupiks modelleerijad ja ametnikud, kes määravad lubatud saasteallikate koguseid ja asukohti (ECMWF).

Hetkel on erinevateks olukordadeks kasutusel versioonid 4.5 ja 5.1 (SILAM). SILAM v.5.1 sisaldab operatiivsel kasutamisel kuut transformatsiooni moodulit: fotokeemilised reaktsioonid (CB-IV), happed, SO_x, iselagunemine, radioaktiivne lagunemine ja allergeeniline õietolm. Neile lisandub kaks skeemi aerosoolidega toimuvatest protsessidest (Sofiev *et al.*, 2013).

SILAMi eelistamine teistele õhusaaste mudelitele oleneb kasutaja vajadustest. Käibel on kümneid õhusaaste mudeleid, kuid süsteemid ja lähenemine on igaühel erinevad (Kukkonen *et al.*, 2012). Arvutusmahtude vähendamiseks tuleb modelleerimisel teha lihtsustusi (Boeker & Van Grondelle, 1995). See on üheks põhjuseks, miks õhusaaste mudelite ülesehitus on niivõrd erinev. Tehtud on omad eelistused, kus lihtsustusi rakendada. Allika- ja meteoandmete suure määramatuse tõttu ei anna detailsed numbrilised mudelid linnas palju paremaid tulemusi kui lihtsam, nt. Gaussi mudel. Viimase eelis on aga tublisti suurem töökiirus. Põhjaliku ülevaate 18 õhusaaste mudelist on teinud Kukkonen *et al.*, 2012. Välja on toodud, kuidas ilmaprognoosid ja atmosfääri keemia on õhusaaste mudelitesse integreeritud, kuidas füüsikalised protsessid on mudelitega parametrizeerimisskeemide kaudu ühendatud, kuidas mudeli ülesehitus mõjutab ennustatavaid muutujaid ning kuidas õhukeemia ja arosooliprotsessid on formuleeritud. Need tingimused hõlbustavad konkreetse vajaduse järgi mudeli valimist.

Kuna SILAMit arendavad ka Eesti teadlased, siis on selle sobivus Eesti tingimustega suurem. Eesti suuruse riigi jaoks ei ole 7-kilomeetrise võrgusammuga TNO-MACC andmebaas linnasaaste eristamiseks piisav, mistõttu on Eesti rakenduses kasutusel Eesti Keskkonnauuringute Keskuse (EKUK) 1-kilomeetrise võrgusammuga andmebaas Eesti ala jaoks (Ots *et al.*, 2012).

Selleks, et luua usaldus mudeli ja selle konkreetsete rakenduste vastu, on mudeli täpsuse hindamine äärmiselt oluline (Kukkonen *et al.*, 2012). SILAM on valideeritud ETEXi eksperimendi, mitmete mõõtmiskampaaniate ja EMEPi õhukvaliteedi mõõtmiste läbi (Prank *et al.*, 2008).

Varasemad uuringud

SILAMi mudelarvutustes on Euroopa puhul märgatud keskmiselt kõrgemaid NO₂ tasemeid, mis viitab mudelis määratud NO₂ tegelikust pikemale elueale ja seeläbi kõrgemale foonikontsentratsioonile. Ülehindamine on olnud väiksem talvekuudel (Huijnen *et al.*, 2010). Eestis on ette tulnud pigem NO₂ alahindamist linnades. See on tõenäoliselt tingitud liiga jämedast võrgulahutusest (3,3x3,3 km), mis ei arvesta kohalikke saasteallikaid, mis on koondunud märgatavalt väiksemale alale (Ots *et al.*, 2012).

Lisaks näib, et algselt mesomastaabi (sajad kuni tuhanded kilomeetrid) rakenduste jaoks mõeldud mudelil SILAM on probleeme kohalikul tasemel allikate lähedal olevate protsesside arvessevõtmisega. SO₂ arvutused on võrdlemisi adekvaatsed, kuid lahkevusi on esinenud tööstuspiirkondades. Sarnaselt NO₂-le on ebatäpsete tulemuste põhjuseks Eesti linnade kohta liiga suur võrgulahutus (Ots *et al.*, 2012).

SILAM alahindab PM2.5 aasta keskmisena üle 2 korra. See võib olla tingitud mudelarvutustes mitte arvestatud suvisest pinnase erosioonist (Ots *et al.*, 2013).

NH₃ ja O₃ on SILAMi Eesti rakenduses varasemalt valideerimata. O₃ arvutamine toimub läbi fotostatsionaarse tasakaalu, mida mõjutab orgaaniliste ühendite juuresolek. See lähenemine ei taga täpseid O₃ tasemeid, kuid on piisav, et arvutada NO ja NO₂ osakaale NO_x-de tasemes (Kukkonen *et al.*, 2012).

Modelleerimistulemusi on oluliselt mõjutanud piirkihi paksuse arvutamise meetod. Parimaid tulemusi annab meteoroloogilistest andmetest saadud piirkihi paksus, kuid see informatsioon ei ole alati saadaval (Sofiev *et al.*, 2006).

5 Metoodika

Mõõtmised

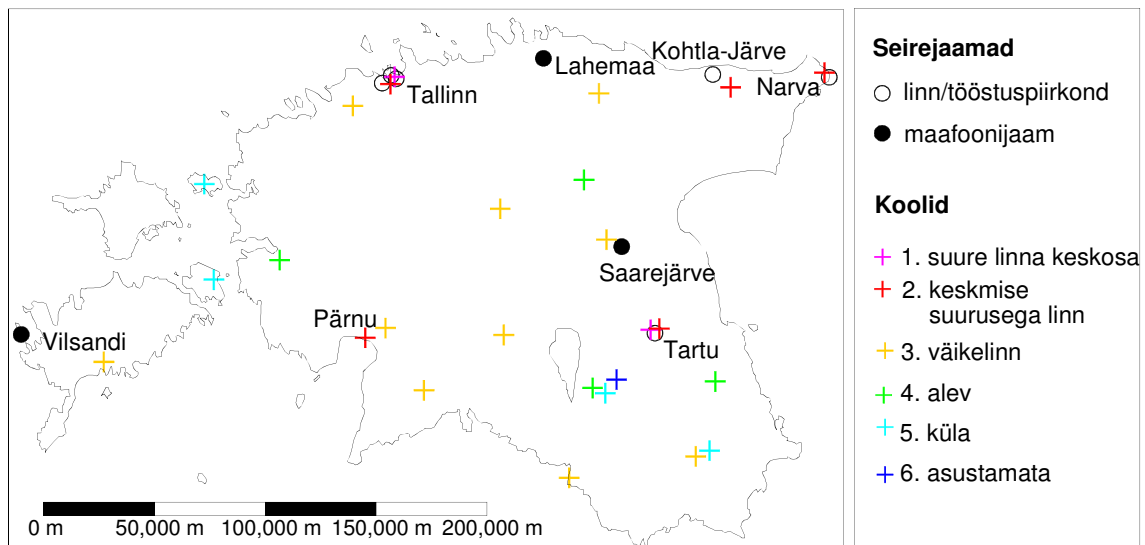
Mõõtmised passiivsete kogujate ja filtri baasil tahmamõõtjaga viidi läbi 26 punktis üle Eesti. Mõõtmisi teostasid koolid, mis kuuluvad rahvusvahelisse GLOBE programmi (globe.gov). Viimasest tingituna on nende koolide õpilastel varasemalt kogemus teha teaduslikel alustel keskkonnamõõtmisi. Mõõtmiskohtade valikul oli eesmärgiks katta piirkond nii geograafiliselt kui ka erinevate asukohatüüpide lõikes. Asula rahvastiku arvu ja saasteallikate hulga põhjal jagati mõõtmiskohad tinglikult kuueks:

- suure linna keskosa - Tallinna Reaalkool, Miina Härma Gümnaasium;
- keskmise linna kese või suure linna serv - Audentese Erakool, Narva Humanitaargümnaasium, Pärnu Vene Gümnaasium, Jõhvi Gümnaasium, Tartu Kivilinna Gümnaasium;
- väikelinn või keskmise linna serv - Kilingi-Nõmme Gümnaasium, Rakvere Reaalgümnaasium, Jõgeva Gümnaasium, Keila Kool, Valga Põhikool, Paide Gümnaasium, Sindi Gümnaasium, Võru Kreutzwaldi Gümnaasium, Viljandi Paalalinna Gümnaasium (uue nimega Viljandi Gümnaasium), Saaremaa Ühisgümnaasium;
- alev või väga väike linn - Lihula Gümnaasium, Rõngu Keskkool, Mooste Põhikool, Rakke Gümnaasium;
- küla suurematest keskustest kaugel - Kääpa Põhikool, Muhu Põhikool, Palupera Põhikool, Vormsi Lasteaed-Põhikool;
- asustamata piirkond – Illi küla lähedal Elva jõe orus Elva linnast lõunas (kontrollpunkt asustamata piirkonna esindamiseks).

Koolides teostatud mõõtmistega võrdlemiseks ja andmebaasi laiendamiseks kasutati lisaks üheksa riikliku välisõhu seirejaama (vt ptk 3) mõõtmistulemusi. Sarnaste asukohatüüpidega kõrvutati järgmised mõõtmiskohad:

- Tartu seirejaam – Miina Härma Gümnaasium;
- Vilsandi seirejaam – Muhu Põhikool;
- Vilsandi seirejaam – Vormsi Lasteaed-Põhikool;
- Saarejärve seirejaam – Rakke Gümnaasium;
- Lahemaa seirejaam – Rakke Gümnaasium;
- Narva seirejaam – Narva Humanitaargümnaasium.

Mõõtmisi teostanud koolide ja riiklike seirejaamade asukohad on välja toodud joonisel 1 ja täpsed koordinaadid lisas 1. Koolide mõõdetud NO₂, SO₂, O₃, NH₃ ja tahma ning seirejaamade mõõdetud NO₂, SO₂ ja PM_{2.5} tulemusi võrreldi mudeli SILAM väljundiga.



Joonis 1. Seirejaamade ja mõõtmisi teostanud koolide asukohad

NO₂, SO₂, O₃, NH₃ ja tahma mõõtmised viidi läbi 2012. aastal neljal kahehädalasel perioodil - 13.02 – 26.02, 14.05 – 27.05, 27.08 – 09.09 ja 19.11 – 03.12. Veebruari- ja novembrikuu kampaaniad esindasid aktiivset küttehooaega ja mai- ja augustikuu kampaaniad sooje aastaaegu, kui lisakütmist eelduslikult ei toimu. Igal mõõtmisperioodil oli õhule eksponeeritud üks komplekt passiivseid NO₂, SO₂, O₃ ja NH₃ kogujaid, mille tulemusena saadi kahe nädala keskmised kontsentratsioonid õhus. Kogujad ja proovide analüüsid pärinesid rahvusvaheliselt sertifitseeritud Eesti Keskkonnauuringute Keskuse Tartu filiaalist. Tahma filtreid vahetati vastavalt nende tumenemisele, kuid keskmiselt üks kord päevas. Kontsentratsioonid arvutati fotomeetrilisel meetodil filtri tumenemist hinnates. Seega on tahmamõõtmisi arvuliselt rohkem, mistõttu annavad need täpsemat informatsiooni saastetasemete muutlikkuse kohta igal mõõtmisperioodil. Samas NO₂, SO₂, O₃ ja NH₃ proovide tulemused on otseselt võrreldavad seirejaamade ja SILAMi väljundi kahe nädala keskmistega, kuid tahma sisaldust õhus ei prognoosi SILAM ega mõõda seirejaamad. Mõlemad tuginevad aerosooli osakestele PM_{2.5} ja PM₁₀. Andmete võrdlemisel on eeldatud, et seoses kütuste põletamisega korreleerub tahma kontsentratsioon PM_{2.5} kogumassiga.

Modelleerimine

Mudeli SILAM (Sofiev *et al.*, 2008) testiversiooni kasutatakse Eesti Meteoroloogia ja Hüdroloogia Instituudis (EMHI) Eesti, Läti, Lõuna-Soome, Venemaa lähialade, Leedu ja Läänemere õhusaaste

simuleerimiseks võrgusammuga 3,3 km. Rakendatud versioon 5.2 sisaldab põhiliste hapete keemiat ja aerosoolide teket. Testiversioonis kasutatakse Eestist pärinevate saasteallikate jaoks detailset Eesti Keskkonnauuringute Keskuse emissioonide andmebaasi. See sisaldab üle 2000 tööstuslikku korstent ja teisi punktallikaid, 5000 km tänavaid ja teid ning olmekütmist. Võrgusammuks on linnades 0,5 km ja maal 1 km. Meteoroloogiliste andmete sisendina kasutatakse EMHI mudelit ETB-HIRLAM. Ümbritsevate alade jaoks kasutatakse TNO-MACC emissioonide andmebaasi võrgusammuga 7 km. Õhusaaste ääreväljad pärinevad Soome Meteoroloogia Instituudi koostatud SILAMi Euroopa jooksudest. Kuna see testiversioon on kasutusel alates 2012. aasta juulist, on veebruari- ja maikuu kampaaniate simulatsioonid tehtud sama võrgusammuga, kuid meteoandmetena on kasutatud mudeli ETA-HIRLAM väljundit võrgusammuga 11 km. Väikesed erinevused võrreldes testiversiooni seadistustega ei mõjuta eelduste kohaselt oluliselt tulemusi.

6 Tulemused

NH₃ ja O₃ SILAMi mudelarvutused ja mõõtmistulemused erinesid oodatult sedavõrd suurel määral, et tulemustes neid võrdlusi ei kajastata. Nagu kirjanduse ülevaates mainitud, on SILAMi NH₃ ja O₃ väljundid varasemalt valideerimata. Mudelarvutused alahindasid NH₃ kontsentratsioone suvel keskmiselt 43 korda ja talvel keskmiselt 80 korda ja O₃ kontsentratsioone keskmiselt 10-23 korda.

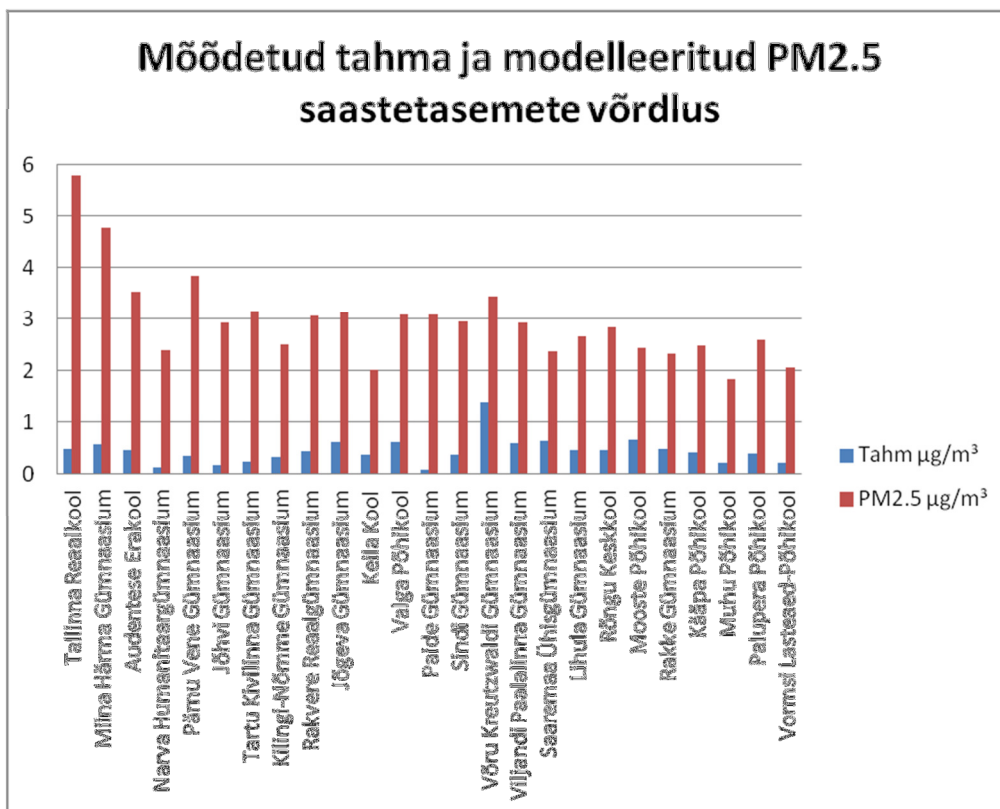
Osooni kasutatakse SILAMi arvutustes hetkel vaid NO ja NO₂ tasemete arvutamiseks. NH₃ puhul on lühikese eluea tõttu määravaks väga kohalikud saasteallikad. Adekvaatsete tulemuste saamiseks on saasteallikate andmebaas liiga hõre. Samuti puuduvad andmebaasis sellised hajusallikad nagu väetatud põllumaad, mis omavad olulist rolli maapiirkondades.

I mõõtmisperiood 13.02 – 26.02

Tahm ja PM2.5

Mõõtmistulemused pärinesid 25 koolist ja 7 seirejaamast.

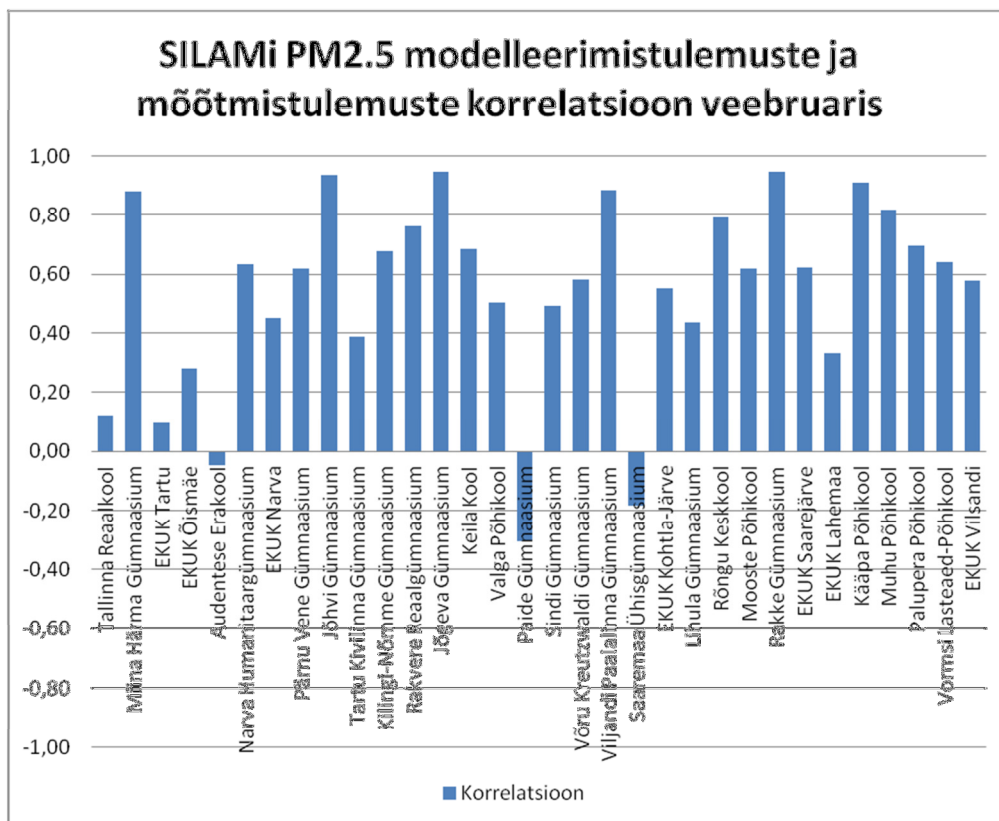
Tahma keskmised kontsentratsioonid jäid vahemikku 0,1-1,4 µg/m³. SILAM hindas saastetasemeid kõrgemaks linnas ja madalamaks hõredamalt asustatud piirkondades, kuid nii koolide kui ka seirejaamade mõõtmistulemuste järgi Eesti tingimustes sellist seaduspära ei tekkinud (Joonis 2).



Joonis 2 Mõõdetud tahma ja modelleeritud PM2.5 veebruarikuu kahe nädala keskmiste kontsentratsioonide võrdlus.

Mõõtmispunktid on järjestatud vasakult paremale linnalisemast asukohatüübist hõredama asustustihedusega asukohatüübini

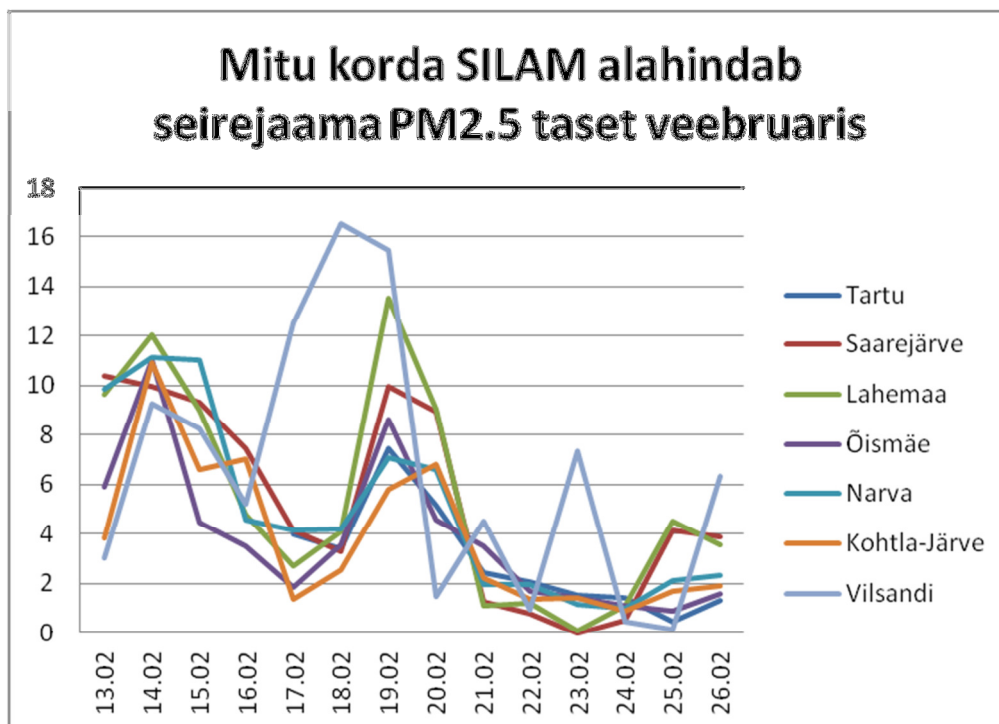
Mõõdetud tahma ja PM2.5 kontsentratsioonid (väärtused üksikute filtrimõõtmiste ehk tüüpiliselt ööpäeva kaupa) korreleerusid hästi modelleeritud PM2.5-ga: 22 juhul 32-st oli korrelatsioonikoefitsient üle 0,5 ja 7 punktis isegi üle 0,8 (Joonis 3). Asukohapõhiseid erinevusi välja ei tulnud. Seosed olid veelgi paremad, kui seirejaamade mõõtmistulemused esitati 24 tunni keskmistena.



Joonis 3 Mudeli SILAM modelleeritud PM2.5 tasemete korrelatsioon koolides mõõdetud tahma ja seirejaamades mõõdetud PM2.5 tulemustega veebruaris

Kahenädalase mõõtmisperioodi esimesel nädalal olid enamasti kõrgemad nii tahma ja PM2.5 mõõtmis- kui ka PM2.5 modelleerimistulemused. Teisel nädalal oli näha kontsentratsioonide langemist. EMHI andmetel oli esimesel nädalal üle Eesti valdavalt miinuskraadid. Teisel nädalal tõusid temperatuurid 0 °C lähedale ning ka sademeid oli rohkem, mistõttu võisid saastetasemed langeda nii olmekütmise vähenemisest kui ka märgsadenemisest tingituna (Kikas *et al.*, 2012; Seinfeld & Pandis, 2006).

Koolides mõõdetud tahma kogustest olid SILAMi PM2.5 tulemused keskmiselt 6 korda kõrgemad, kuna SILAMi PM2.5 sisaldab ka teisi saasteaineid peale tahma. Samas seirejaamade mõõtmistulemuste ja SILAMi modelleerimistulemuste võrdluses oli näha, et SILAM kaldus PM2.5 kontsentratsioone alahindama keskmiselt 4 korda. Tervet mõõtmisperioodi vaadates ilmnes, et SILAM alahindas PM2.5 saastetasemeid pigem esimesel külmemal mõõtmisnädalal – keskmiselt 6,7 korda. Teisel nädalal oli modelleeritud ja mõõdetud PM2.5 tasemete erinevus keskmiselt 1,7-kordne (Joonis 4).



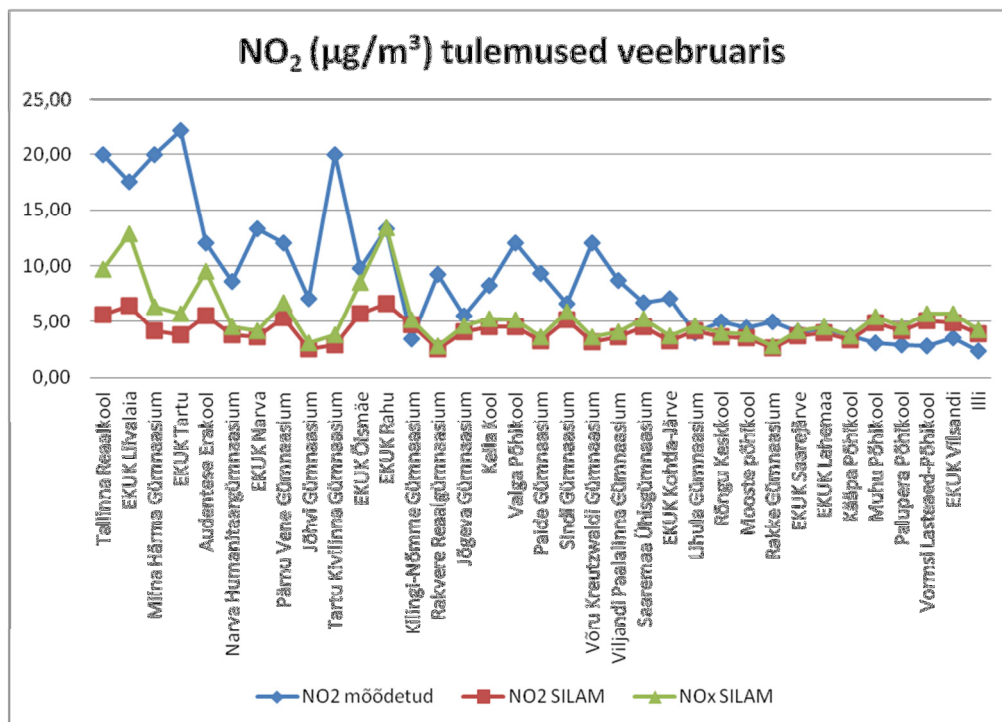
Joonis 4 Mõõtmisperioodil 13.02-26.02 esinenud SILAMi ja seirejaamade PM2.5 kontsentratsioonide erinevus kordades

Sarnaste asukohtadega seirejaamade ja koolide tulemuste võrdlusest tuli välja, et tahma sisaldus PM2.5-s jäi enamasti vahemikku 2-5%. See oli mõnevõrra madalam kui Ameerika Ühendriikide kohta tehtud uuringus, kuid ka õhus oleva tahma sisaldused on Eestis madalamad (Hand *et al.*, 2011).

Lämmastikdioksiid NO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 25 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast. Kontsentratsioonid jäid vahemikku 2,4-20 µg/m³. NO₂ tasemed olid kõrgemad tihedamalt asustatud piirkondades.

NO₂ puhul tuli välja, et mida linnalisem asukoht, seda rohkem SILAM alahindas saastetasemeid. Suurtest keskustest kaugel olevates küldes kaldus SILAM saastetasemeid ülehindama. Kuna alahindamine oli oodatust suurem, võrreldi mõõtmistulemusi ka SILAMi NO_x (NO ja NO₂ kontsentratsioon kokku) väljundiga (Joonis 5).



Joonis 5 Mõõdetud NO₂ võrdlus modelleeritud NO₂ ja NO_x saastetasemetega veebruarikuus

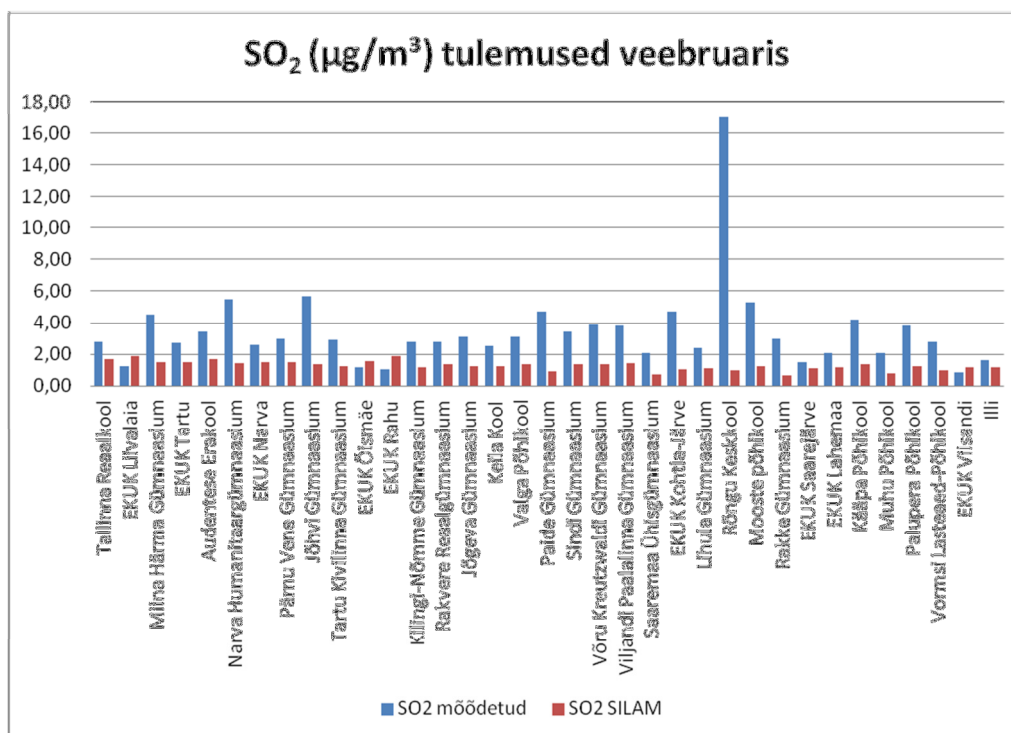
Paranenud tulemused viitasid, et SILAM võib hinnata süstemaatiliselt NO₂ ja NO proportsiooni NO_x hulgas liiga NO kasuks (Past *et al.*, 1997). Samas kõrgemad NO_x tasemed esinesid eelkõige Tallinnas. Suuremates linnades oli modelleeritud NO_x tase siiski liiga madal võrreldes mõõdetud tulemustega. Mõnevõrra paremaid tulemusi oli näha seirejaamades (Liivalaia, Õismäe, Rahu).

Kuna seirejaamades mõõdetakse NO₂ puhul tunnikeskmi kontsentratsioone, oli võimalik leida korrelatsioonid mõõtmistulemuste ja SILAMi väljundi vahel. Korrelatsioonikoefitsiendid jäid seirejaamade tulemuste võrdluses SILAMi NO₂ kontsentratsioonidega vahemikku 0,21-0,69.

Vääveldioksiid SO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 25 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast. Kontsentratsioonid jäid vahemikku 0,8-17 µg/m³.

SILAM kaldus SO₂ kontsentratsioone keskmiselt üle 2 korra alahindama (Joonis 6). Ülehindamist esines vaid seirejaamade mõõtmispunktides (Liivalaia, Õismäe, Rahu, Vilsandi). Samas olid SILAMi modelleeritud tulemuste ja seirejaamade mõõtmistulemuste korrelatsioonid positiivsed, kuid pigem madalad.



Joonis 6 Mõõdetud SO₂ võrdlus modelleeritud SO₂ saastetasemetega veebruarikuus

Paistis, et SILAM hindab saastetasemeid kõrgemaks linnas ja madalamaks hõredamalt asustatud piirkondades. Mõõtmistulemustes asukohapõhiselt erinevusi välja ei tulnud.

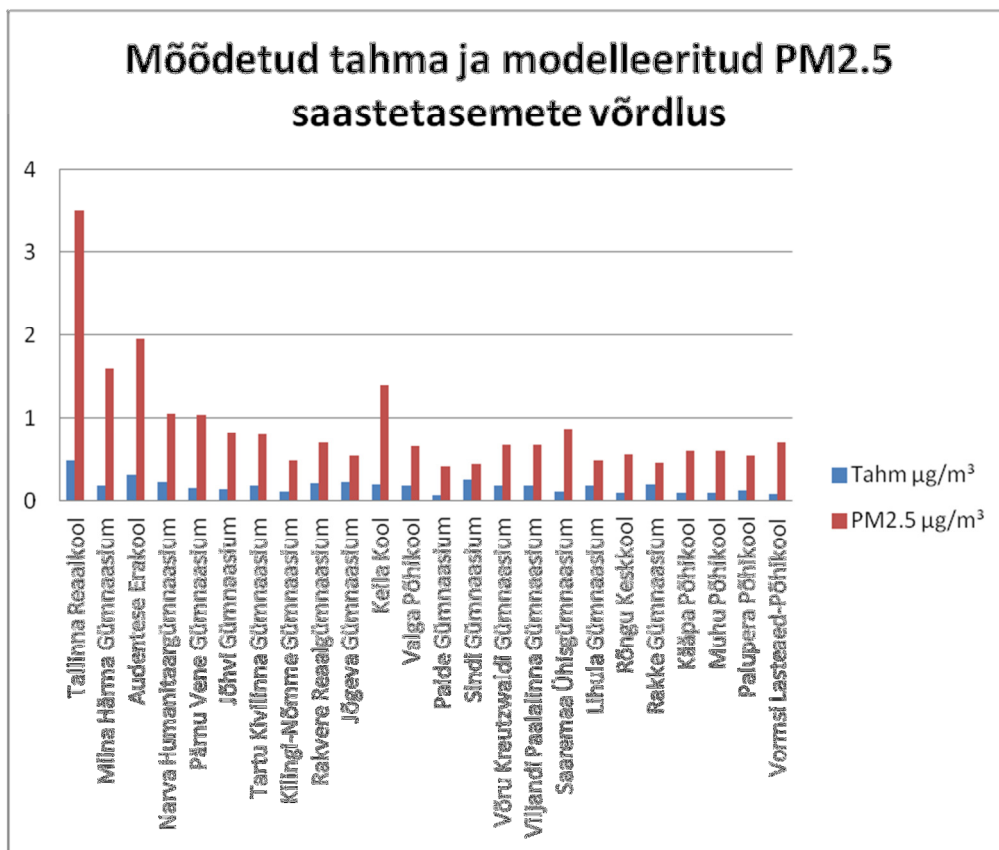
Võrreldes mõõtmistulemustega olid modelleeritud SO₂ tasemed üle Eesti ühtlased, jäädes vahemikku 0,6-1,9 µg/m³. Mõõtmisandmetes esines mõnel juhul kohalikest punktallikatest nagu katlamajad ja tööstusettevõtted tingitud võrdlemisi kõrgeid kontsentratsioone (kuni 17 µg/m³). Muudel juhtudel olid ka kahe nädala keskmised mõõtmistulemused pigem madalad.

II mõõtmisperiood 14.05 – 27.05

Tahm ja PM_{2.5}

Mõõtmistulemused pärinesid 24 koolist ja 7 seirejaamast. Puudu olid Mooste Põhikooli mõõtmistulemused.

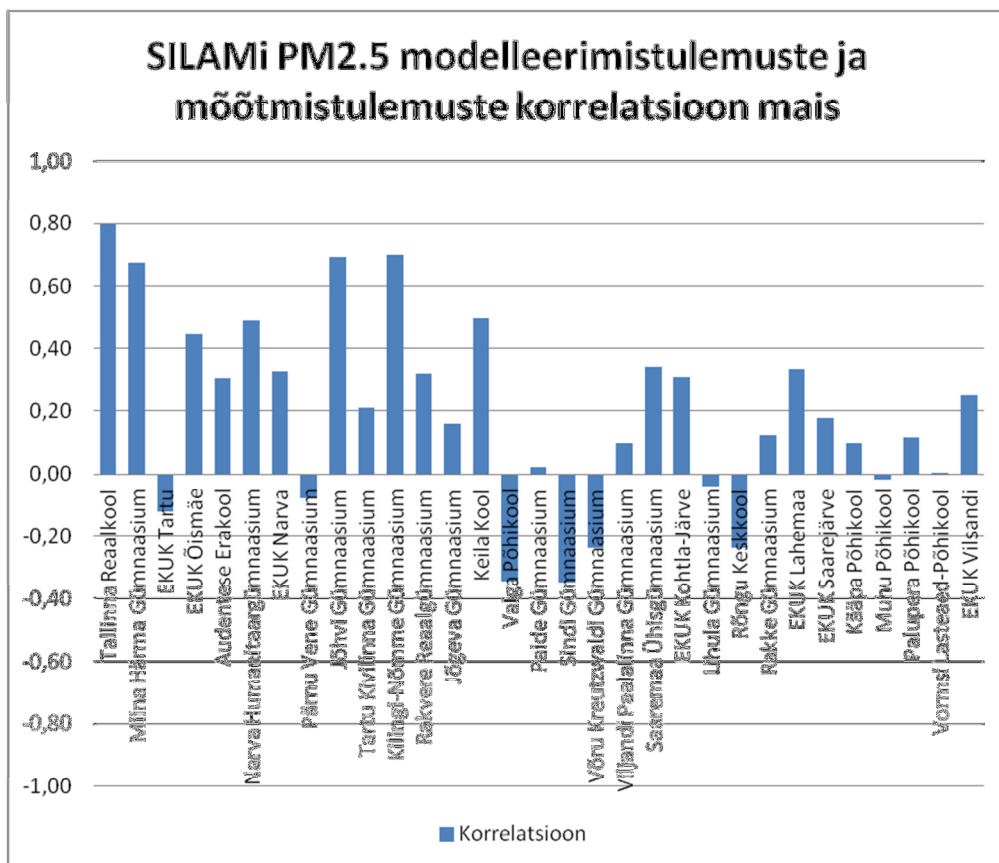
Võrreldes esimese mõõtmisperioodiga, olid maikuu mõõtmistulemused peaaegu 3 korda madalamad, jäädes keskmiselt vahemikku 0,1-0,5 µg/m³. Asukohatüüpide lõikes paistis välja seaduspära, et linnades on tahma saastetasemed kõrgemad kui hõredamalt asustatud piirkondades. See pidas paika ka PM_{2.5} mõõdetud ja modelleeritud tulemuste puhul (Joonis 7).



Joonis 7 Mõõdetud tahma ja modelleeritud PM2.5 maikuu kahe nädala keskmiste kontsentratsioonide võrdlus.

Mõõtmispunktid on järjestatud vasakult paremale linnalisemast asukohatüübist hõredama asustustihedusega asukohatüübini

Mõõdetud tahma ja PM2.5 kontsentratsioonid korreleerusid modelleeritud PM2.5-ga mõnevõrra kehvemini kui veebruarikuus: 5 juhul 31-st oli korrelatsioonikoefitsient üle 0,5, kuid siiski valdavalt positiivne (Joonis 8). Asukohapõhiselt paistis, et suuremates asulates olid tulemused paremini korreleerunud. Tulemused olid märgatavalt paremad, kui seirejaamade mõõtmistulemused esitati 24 tunni keskmistena nagu ka eelnevalt välja tuli.



Joonis 8 Mudeli SILAM modelleeritud PM2.5 tasemete korrelatsioon koolides mõõdetud tahma ja seirejaamades mõõdetud PM2.5 tulemustega mais

Koolides mõõdetud tahma kogustest olid SILAMi PM2.5 tulemused keskmiselt 5 korda kõrgemad. Samas seirejaamade mõõtmistulemuste ja SILAMi modelleerimistulemuste võrdluses oli näha, et ka kevadperioodil kaldus SILAM PM2.5 kontsentratsioone alahindama keskmiselt koguni 8 korda.

Sarnaste asukohtadega seirejaamade ja koolide tulemuste võrdlusest tuli välja, et tahma sisaldus PM2.5-s jäi enamasti vahemikku 1-3%.

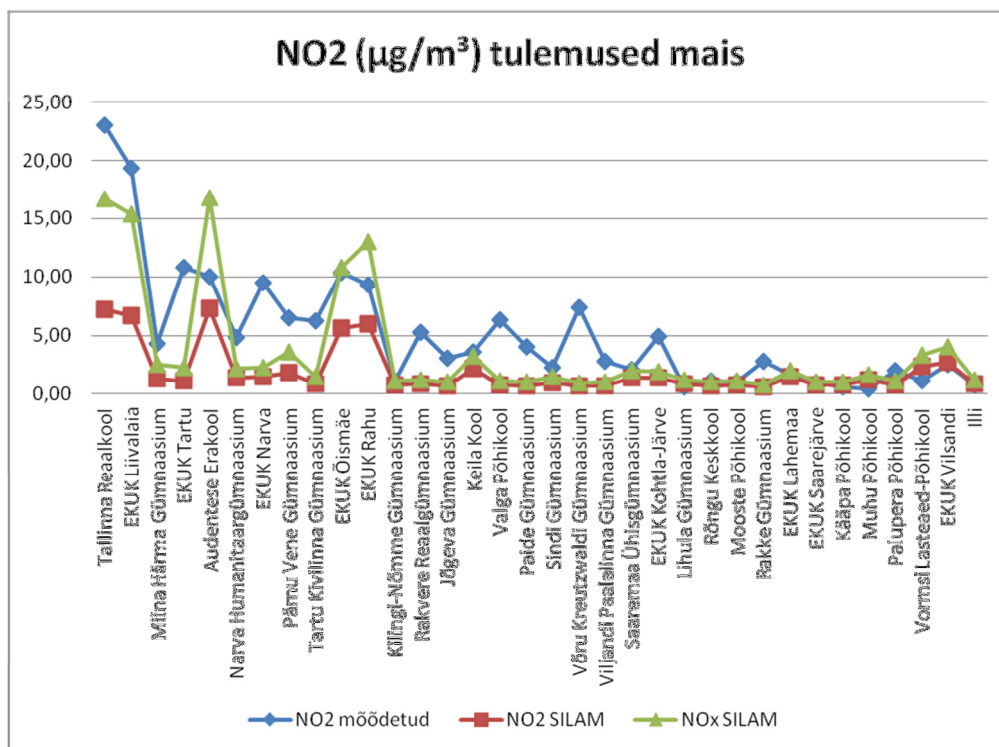
Lämmastikdioksiid NO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 24 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast. Puudu olid Jõhvi Gümnaasiumi mõõtmistulemused.

NO₂ mõõdetud kontsentratsioonid jäid vahemikku 0,4-23 µg/m³, olles keskmiselt madalamad kui talvisel veebruarikuu mõõtmisperioodil. Samas keset Tallinna linna olid kõrgemad kontsentratsioonid. Korrelatsioonikoefitsiendid jäid seirejaamade tulemuste võrdluses SILAMi NO₂ kontsentratsioonidega vahemikku 0,05-0,53.

Tendents, et NO₂ tasemed on kõrgemad tihedamalt asustatud piirkondades pidas ka kevadiste mõõtmiste puhul paika.

Taas tuli välja, et mida linnalisem asukoht, seda rohkem SILAM alahindab saastetasemeid. Suurtest keskustest kaugel olevates külates kaldus SILAM saastetasemeid ülehindama. Jätkuvalt võrreldi mõõtmistulemusi ka SILAMi NO_x väljundiga (Joonis 9).



Joonis 9 Mõõdetud NO₂ võrdlus modelleeritud NO₂ ja NO_x saastetasemetega mais

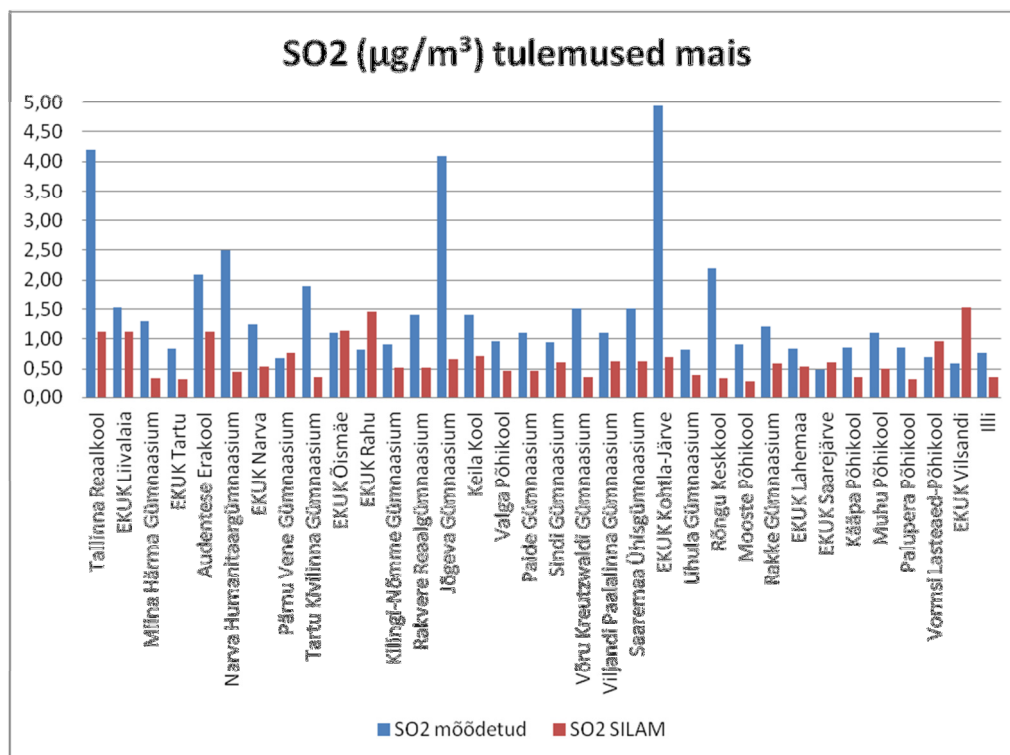
Võrreldes veebruarikuuga ei andnud NO₂ mõõtmistulemuste võrdlus modelleeritud NO_x tasemetega märkimisväärselt paremaid tulemusi. Taas tulid kõrged NO_x tasemed välja Tallinnas.

Väeveldioksiid SO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 24 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast. Puudu olid Jõhvi Gümnaasiumi mõõtmistulemused.

SO₂ mõõdetud ja modelleeritud kontsentratsioonid olid võrreldes talvise perioodiga üle 2 korra madalamad. Võrreldes mõõtmistulemustega olid modelleeritud SO₂ tasemed taas üle Eesti ühtlased, jäädes vahemikku 0,3-1,5 µg/m³. Mõõdetud SO₂ jäi vahemikku 0,7-4,8 µg/m³. Mõõtmisandmetes esines mõnel juhul kohalikest punktallikatest nagu katlamajad ja tööstusettevõtted tingituna üldisest tasemest kõrgemaid kontsentratsioone, mida mudel ei tuvastanud.

SILAM kaldus SO₂ kontsentratsioone keskmiselt üle 2 korra alahindama (Joonis 10). Ülehindamist esines rohkem seirejaamade mõõtmispunktides (Õismäe, Rahu, Saarejärve, Vilsandi). SILAMi modelleeritud tulemuste ja seirejaamade mõõtmistulemuste korrelatsioonid olid küll positiivsed, kuid pigem madalad.



Joonis 10 Mõõdetud SO₂ võrdlus modelleeritud SO₂ saastetasemetega maikuu

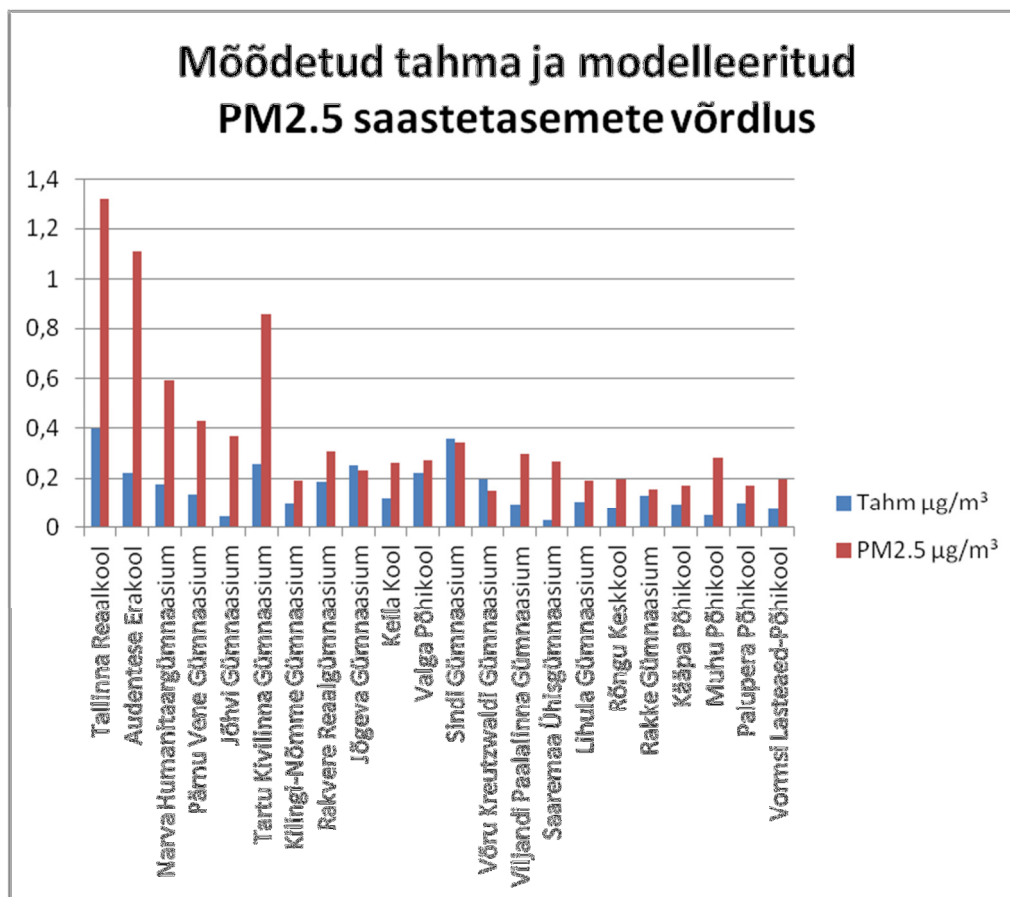
Mõõtmistulemustes ega modelleeritud saastetasemetes asukohapõhiselt erinevusi välja ei tulnud.

III mõõtmisperiood 27.08 – 09.09

Tahm ja PM2.5

Mõõtmistulemused pärinesid 22 koolist ja 7 seirejaamast. Puudu olid Miina Härma Gümnaasiumi, Paide Gümnaasiumi ja Mooste Põhikooli mõõtmistulemused.

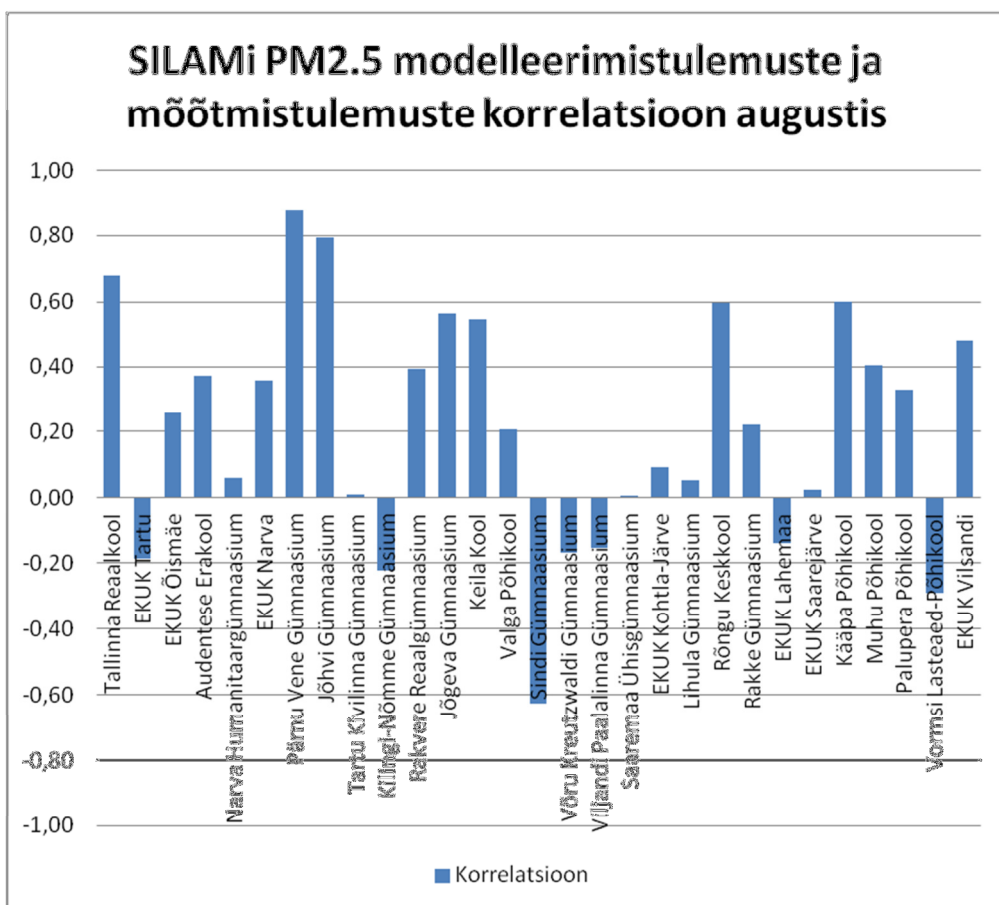
Augustikuu mõõtmistulemused sarnanesid maikuu mõõtmistulemustega. Tahma kontsentratsioonid jäid vahemikku 0,1-0,4 µg/m³. Ka asukohatüüpide lõikes paistis välja tahma puhul kehtiv seaduspära, et linnades on saastetasemed kõrgemad kui hõredamalt asustatud piirkondades. See pidas paika ka PM2.5 modelleeritud tulemuste puhul (Joonis 11).



Joonis 11 Mõõdetud tahma ja modelleeritud PM2.5 augustikuu kahe nädala keskmiste kontsentratsioonide võrdlus.

Mõõtmispunktid on järjestatud vasakult paremale linnalisemast asukohatüübist hõredama asustustihedusega asukohatüübini

Sarnaselt maikuuga korreleerusid mõõdetud tahma ja PM2.5 kontsentratsioonid modelleeritud PM2.5-ga mõnevõrra kehvemini kui veebruaris: 7 juhul 29-st oli korrelatsioonikoefitsient üle 0,5, kuid siiski valdavalt positiivne (Joonis 12). Asukohapõhiseid erinevusi välja ei tulnud. Tulemused olid märgatavalt paremad, kui seirejaamade mõõtmistulemused esitati 24 tunni keskmistena nagu ka eelnevalt välja tuli.



Joonis 12 Mudeli SILAM modelleeritud PM2.5 tasemete korrelatsioon koolides mõõdetud tahma ja seirejaamades mõõdetud PM2.5 tulemustega augustis

Koolides mõõdetud tahma kogustest olid SILAMi PM2.5 tulemused keskmiselt 3 korda kõrgemad. Samas seirejaamade mõõtmistulemuste ja SILAMi modelleerimistulemuste võrdluses oli näha, et SILAM kaldus PM2.5 kontsentratsioone alahindama keskmiselt 8 korda nagu ka maikuus.

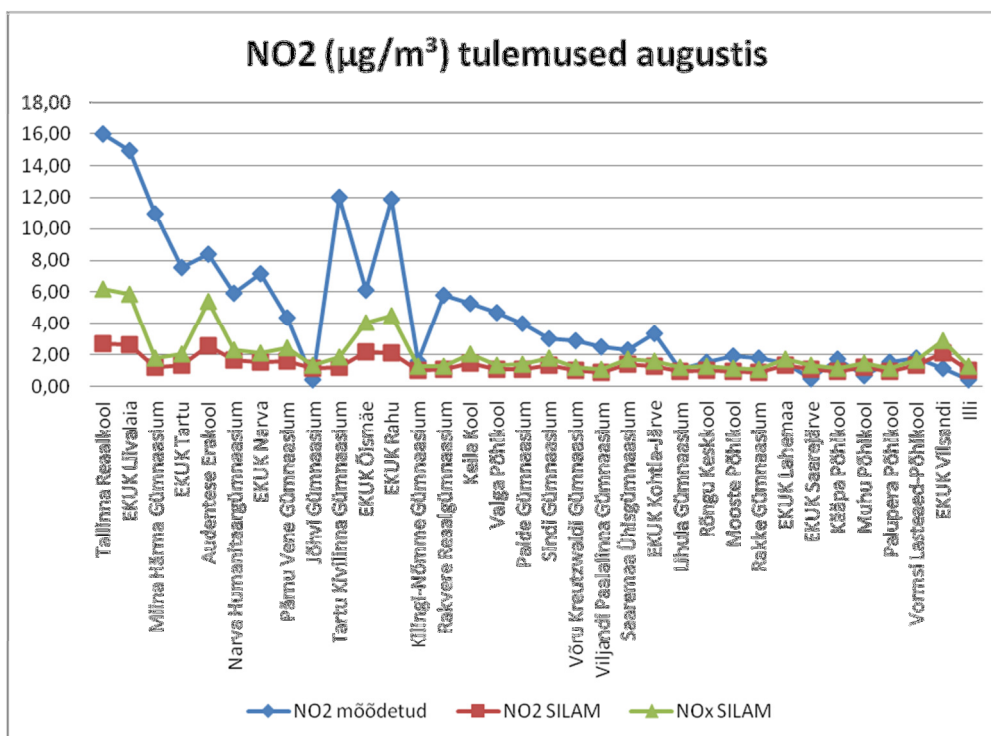
Sarnaste asukohtadega seirejaamade ja koolide tulemuste võrdlusest tuli välja, et tahma sisaldus PM2.5-s jäi enamasti vahemikku 1-2%.

Lämmastikdioksiid NO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 24 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast. Puudu olid Jõgeva Gümnaasiumi mõõtmistulemused.

NO₂ tulemused kopeerisid peaagu täpselt kevadist olukorda (Joonis 13). Mõõdetud kontsentratsioonid jäid vahemikku 0,4-16 µg/m³, olles ligikaudu võrdsed maikuus mõõdetud kontsentratsioonidega. Kontsentratsioonide langus linnast foonialade suunas oli taas võrdlemisi

sujuv. Korrelatsioonikoefitsiendid jäid seirejaamade tulemuste võrdluses SILAMi NO₂ kontsentratsioonidega vahemikku 0,15-0,50.



Joonis 13 Mõõdetud NO₂ võrdlus modelleeritud NO₂ ja NO_x saastetasemetega augustikuus

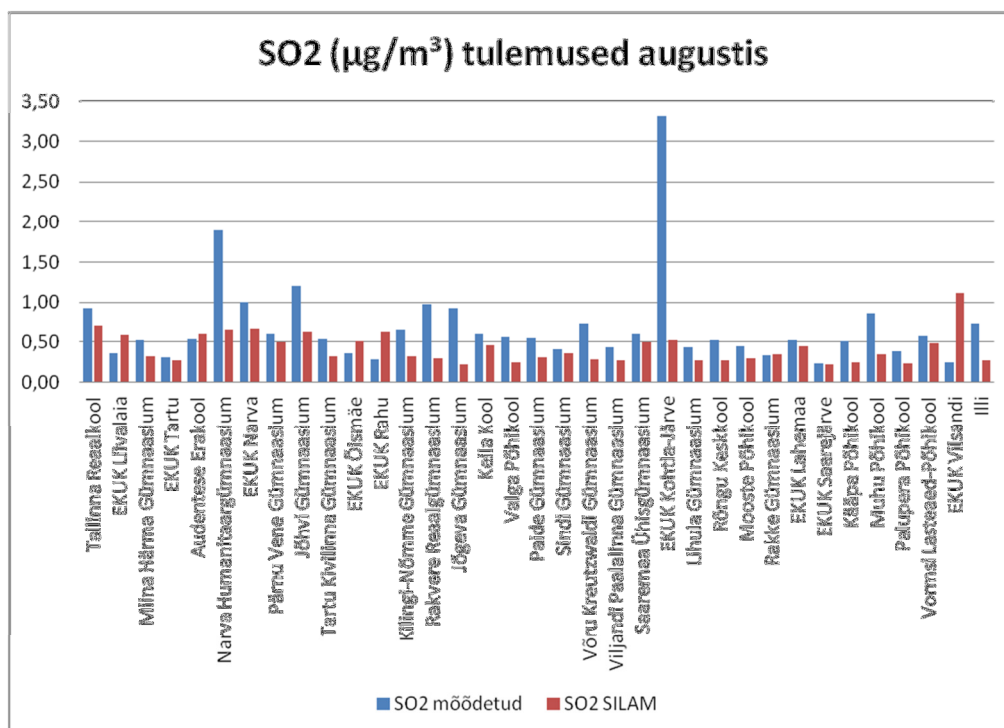
SILAMi NO_x tulemused korreleerusid mõõtmistulemustega paremini kui NO₂ jällegi Tallinna punktide tõttu. Samuti kordus tendents, et SILAM alahindab NO₂ saastetasemeid linnas ning ülehindab taustaaladel.

Vääveldioksiid SO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 25 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast.

SO₂ mõõdetud kontsentratsioonid jäid vahemikku 0,2-3,3 µg/m³, olles madalamad kui maikuu. Võrreldes mõõtmistulemustega olid modelleeritud SO₂ tasemed taas üle Eesti ühtlased, jäädes vahemikku 0,2-1,1 µg/m³. Mõõtmisandmetes esines Ida-Virumaal kohalikest punktallikatest nagu elektrijaamad ja keemiatööstused tingituna üldisest tasemest kõrgemaid kontsentratsioone, mida mudel ei ennustanud.

SILAMi ja mõõdetud tulemuste keskmised olid ligilähedased, kuid endiselt kaldus SILAM SO₂ kontsentratsioone alahindama ning ka korrelatsioonid olid pigem madalad (Joonis 14). Ülehindamist esines rohkem seirejaamade mõõtmispunktides (Liivalaia, Õismäe, Rahu, Vilsandi).



Joonis 14 Mõõdetud SO₂ võrdlus modelleeritud SO₂ saastetasemetega augustikuus

Mõõtmistulemused ega modelleeritud saastetasemetes asukohapõhiselt erinevusi välja ei tulnud.

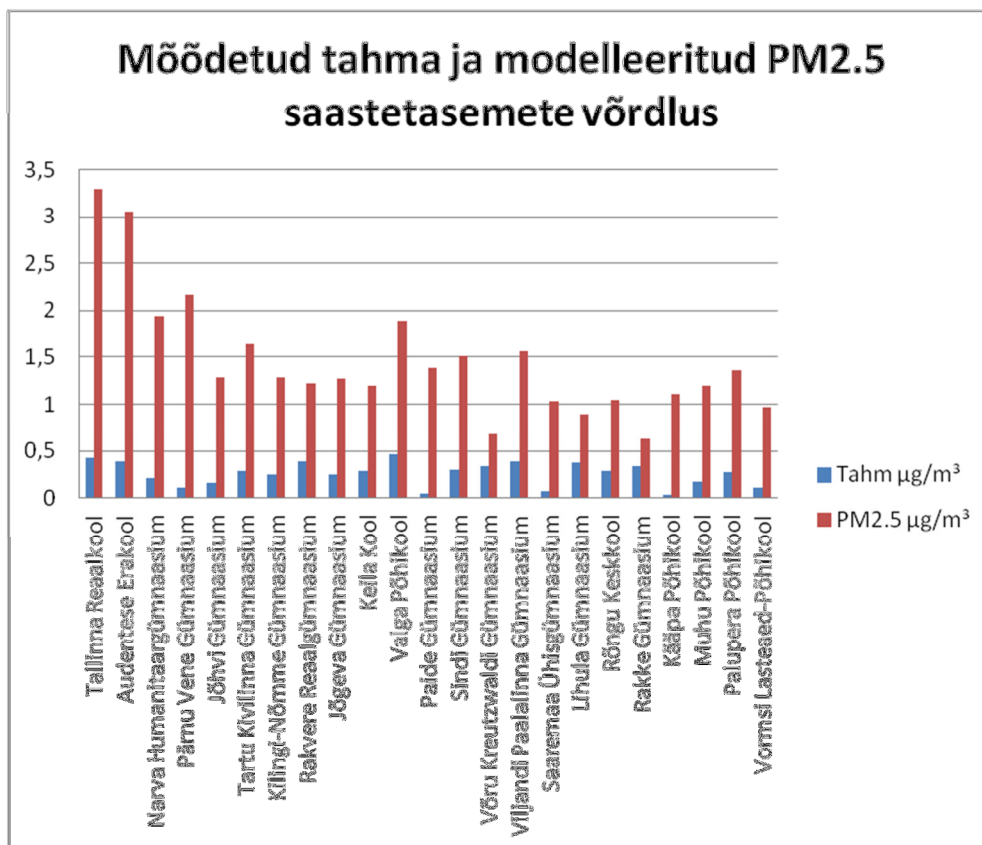
IV mõõtmisperiood 19.11 – 03.12

Tahm ja PM2.5

Mõõtmistulemused pärinesid 23 koolist ja 7 seirejaamast. Puudu olid Mooste Põhikooli ja Miina Härma Gümnaasiumi mõõtmistulemused.

Novembrikuu tahma kontsentratsioonid olid sarnaselt veebruarikuise talvise mõõtmisperioodiga vahemikus 0,1-1,4 µg/m³, kuid keskmiselt 2 korda madalamad. Novembrikuus olid ka välistemperatuurid kõrgemad, mis võisid mõjutada kütmise hulka. Samas olid saastetasemed kõrgemad kui mais ja augustis.

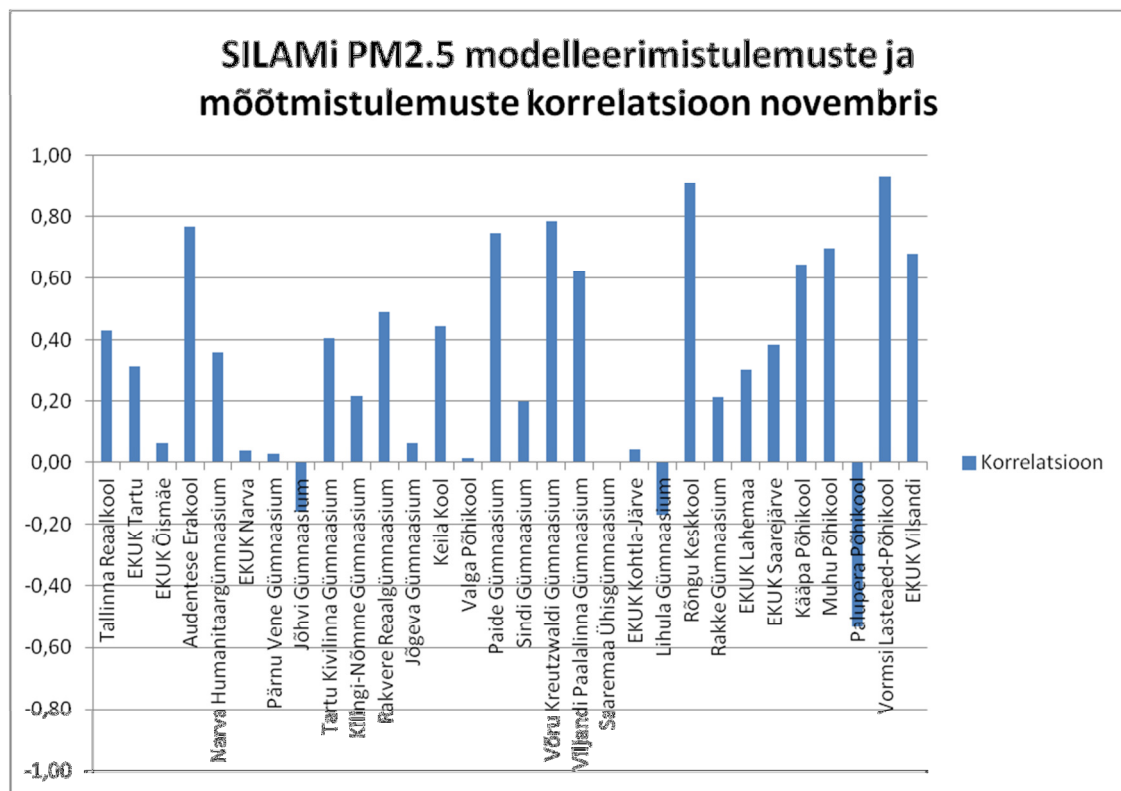
Linnades olid tahma saastetasemed kõrgemad kui hõredamalt asustatud piirkondades. See pidas paika ka PM2.5 mõõdetud ja modelleeritud tulemuste kohta (Joonis 15).



Joonis 15 Mõõdetud tahma ja modelleeritud PM2.5 novembrikuu kahe nädala keskmiste kontsentratsioonide võrdlus.

Mõõtmispunktid on järjestatud vasakult paremale linnalisemast asukohatüübist hõredama asustustihedusega asukohatüübini

Mõõdetud tahma ja PM2.5 kontsentratsioonid korreleerusid modelleeritud PM2.5-ga mõnevõrra paremini kui mais ja augustis, kuid mitte nii hästi kui veebruaris: 9 juhul 30-st oli korrelatsioonikoefitsient üle 0,5 (Joonis 16). Asukohapõhiseid erinevusi välja ei tulnud. Tulemused olid natukene paremad, kui seirejaamade mõõtmistulemused esitati 24 tunni keskmistena.



Joonis 16 Mudeli SILAM modelleeritud PM2.5 tasemete korrelatsioon koolides mõõdetud tahma ja seirejaamades mõõdetud PM2.5 tulemustega novembris

Koolides mõõdetud tahma kogustest olid SILAMi PM2.5 tulemused keskmiselt 8 korda kõrgemad. Samas seirejaamade mõõtmistulemuste ja SILAMi modelleerimistulemuste võrdluses oli näha, et SILAM kaldus PM2.5 kontsentratsioone alahindama keskmiselt 6 korda.

Sarnaste asukohatüüpidega seirejaamade ja koolide tulemuste võrdlusest tuli välja, et tahma sisaldus PM2.5-s jäi enamasti vahemikku 2-5% nagu ka veebruarikuus.

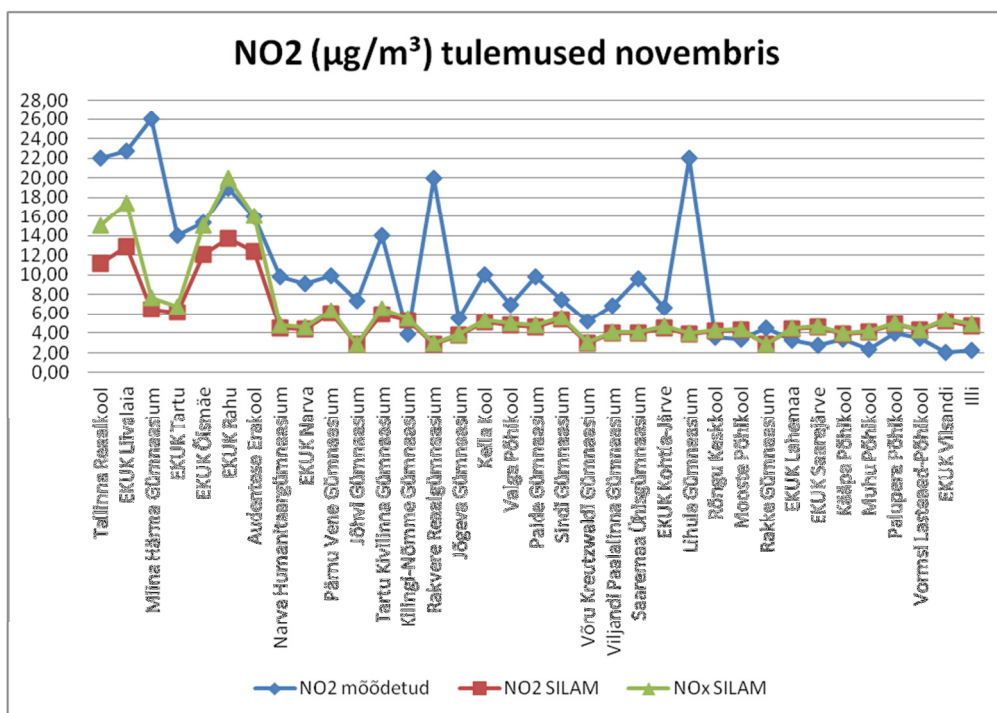
Lämmastikdioksiid NO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 25 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast.

Mõõdetud kontsentratsioonid jäid vahemikku 2,1-22,7 µg/m³, olles samas suurusjärgus mis veebruarikuu tulemused. NO₂ tasemed olid kõrgemad tihedamalt asustatud piirkondades. Korrelatsioonikoefitsiendid jäid seirejaamade tulemuste võrdluses SILAMi NO₂ kontsentratsioonidega vahemikku 0,10-0,55.

NO₂ puhul jätkus seaduspära: mida linnalisem asukoht, seda rohkem SILAM alahindab saastetasemeid. Suurtest keskustest kaugel olevates küldes kaldus SILAM saastetasemeid

ülehindama. SILAMi NO₂ ja NO_x tasemed olid ligilähedased kõikjal peale Tallinna, kus NO_x seostus mõõtmisandmetega paremini (Joonis 17).



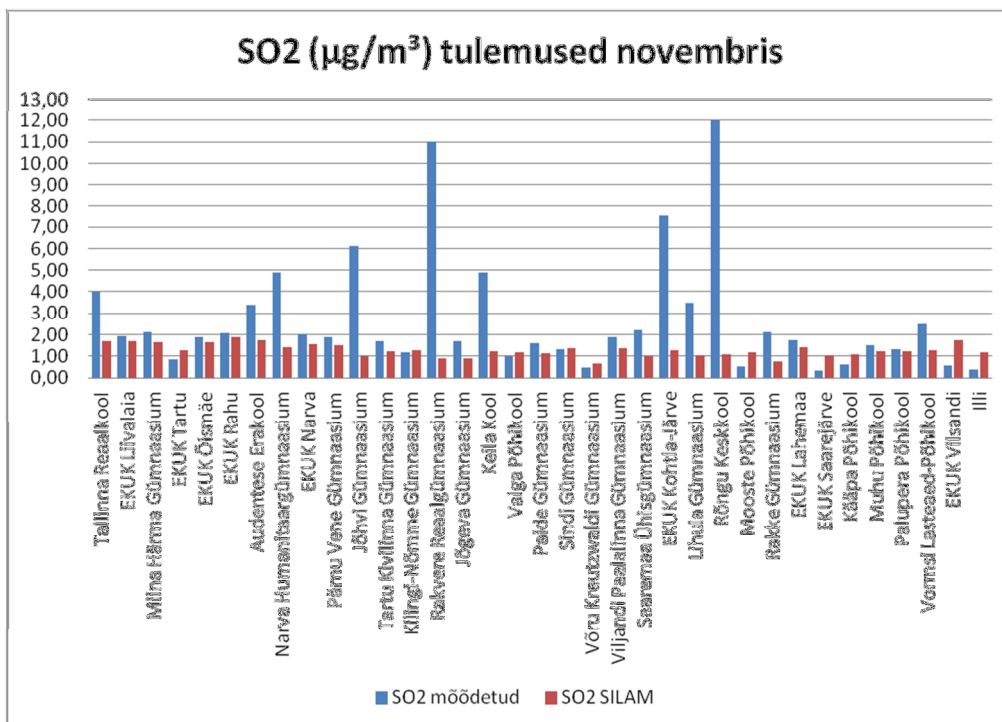
Joonis 17 Mõõdetud NO₂ võrdlus modelleeritud NO₂ ja NO_x saastetasemetega veebruarikuus

Väeveldioksiid SO₂

Mõõtmistulemused pärinesid 25 koolist, Illi kontrollpunktist ja 9 seirejaamast.

Mõõdetud SO₂ tasemed jäid vahemikku 0,4-12 µg/m³. Võrreldes mõõtmistulemustega olid modelleeritud SO₂ tasemed üle Eesti ühtlased, jäädes vahemikku 0,6-1,9 µg/m³. Mõõtmisandmetes esines mõnel juhul kohalikest punktallikatest nagu katlamajad ja tööstusettevõtted tingitud võrdlemisi kõrgeid kontsentratsioone, mida mudel ei ennustanud. Muudel juhtudel olid ka kahe nädala keskmised mõõtmistulemused pigem madalad.

SILAM kaldus SO₂ kontsentratsioone keskmiselt üle 2 korra alahindama (Joonis 18). Ka SILAMi modelleeritud tulemuste ja seirejaamade mõõtmistulemuste korrelatsioonid olid veelgi madalamad kui eelmistel mõõtmisperioodidel, kuigi valdavalt positiivsed.



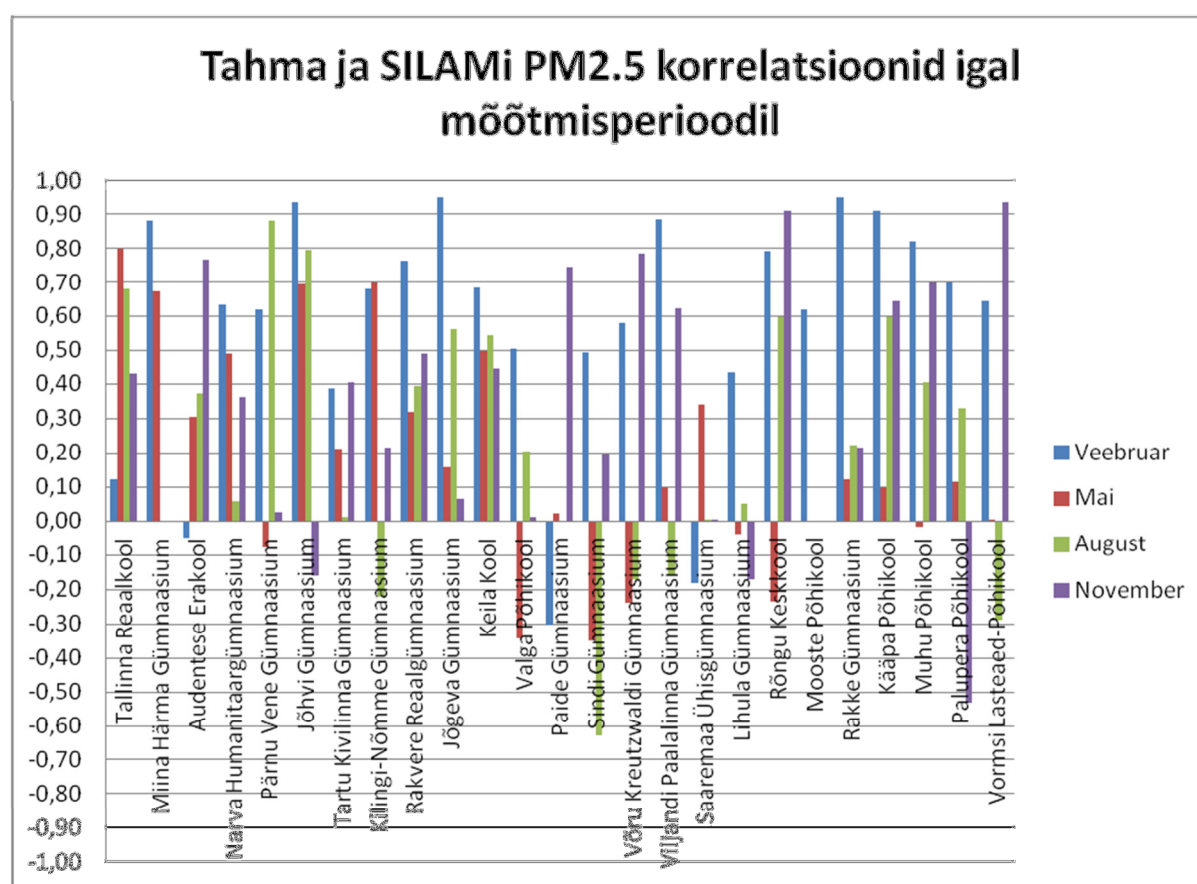
Joonis 18 Mõõdetud SO₂ võrdlus modelleeritud SO₂ saastetasemetega veebruarikuus

Paistis, et SILAM hindab saastetasemeid kõrgemaks linnas ja madalamaks hõredamalt asustatud piirkondades. Mõõtmistulemustes asukohapõhiseid erinevusi välja ei tulnud.

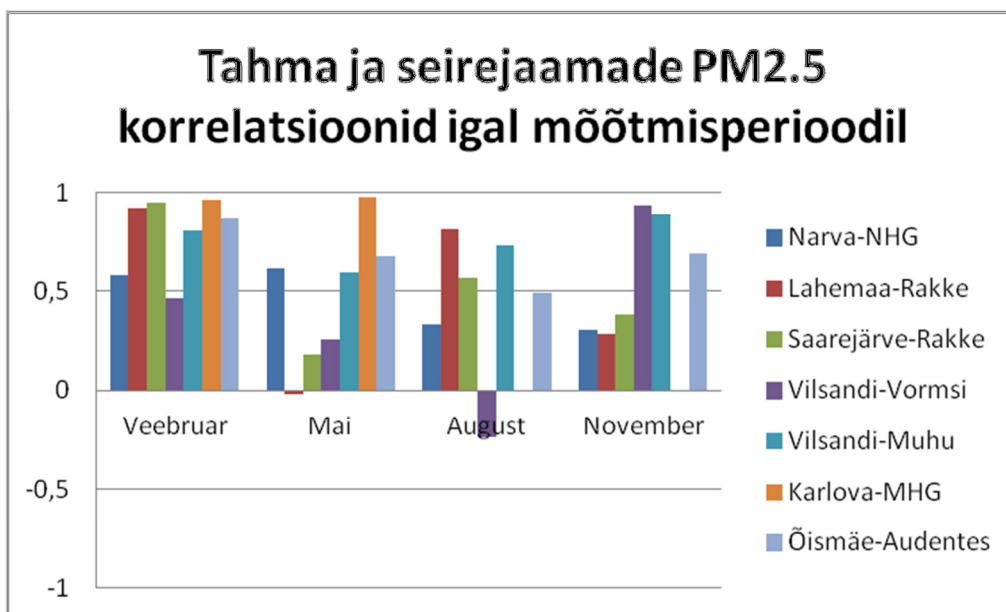
7 Arutelu ja analüüs

Koolide mõõtmistulemuste esinduslikkus

Koolide tahma mõõtmistulemused korreleerusid märkimisväärselt hästi nii SILAMi (Joonis 19) kui ka seirejaamade (Joonis 20) PM2.5 tulemustega, mistõttu võib koolide mõõtmistulemusi pidada võrdlemisi esinduslikeks. Negatiivseid korrelatsioone esines pigem kevadel ja suvel, kui tahma kontsentratsioonid on vähesest kütmisest tingituna madalamad. Väga väikeste tahma koguste juures, kui filter tumeneb vähe, hindab tahmamõõtja kalibratsioonikõver tahma üle. Seega võisid mõõtmistulemused soojematel perioodidel olla ebatäpsemad.



Joonis 19 Koolide mõõdetud tahma ja SILAMi modelleeritud PM2.5 korrelatsioonid igal mõõtmisperioodil



Joonis 20 Koolide mõõdetud tahma ja seirejaamade mõõdetud PM2.5 korrelatsioonid igal mõõtmisperioodil. Võrreldud on sarnaste asukohatüüpidega mõõtmispunkte

Koolide tahma mõõtmistulemusi võib pidada adekvaatseks ka tänu kirjanduses väljatoodud seaduspärade esile kerkimisele. Erinevused saastetasemetes olid nii aastaaegade kui ka asukohatüüpide lõikes.

Passiivsete kogujate kasutamine on tehtud võimalikult lihtsaks ka vastava kvalifikatsioonita inimestele, mistõttu on tulemused usaldusväärsemad kui tahmamõõtjatega läbi viidud mõõtmiste puhul. Mõõtmistulemusi võib mõjutada seadmete ebasobiv asukoht, kuid antud mõõtmiste puhul kontrolliti mõõtmiskoha valikut.

NO₂ ja SO₂ kontsentratsioonide seaduspärad vastasid kirjanduses väljatoodule, mistõttu võib eeldada, et tegemist oli korrektsete tulemustega. Kuna kõigi gaasiliste saasteainete passiivsed kogujad asusid ühes kohas, võib ka NH₃ ja O₃ mõõtmistulemusi esinduslikeks pidada.

Tahm ja PM2.5

Võrreldes 1994. aastal läbi viidud mõõtmiskampaaniaga, kui tahma kontsentratsioonid jäid vahemikku 0,2-1,5 µg/m³ (Kikas, 1996), olid antud tulemused ligilähedased, jäädes vahemikku 0,1-1,4 µg/m³. Tahma kontsentratsioonid olid talvel kõrgemad kui suvel. See vastab kirjanduses väljatoodule, et talvisel perioodil on küttest tingituna tahma õhus rohkem (EPA United States, 2010).

SILAMi modelleerimistulemused olid keskmiselt 6 korda kõrgemad kui mõõdetud tahma väärtused, kuna PM2.5 sisaldab ka teisi saasteaineid peale tahma. Sarnaste asukohatüüpidega seirejaamade ja koolide tulemuste võrdlusest tuli välja, et tahma sisaldus PM2.5-s jäi suvel vahemikku 1-3% ja talvel

vahemikku 2-5%. Tahma osakaalude erinevus külmadel ja soojadel perioodidel on ka varasemate uuringutega tõestatud (Hand *et al.*, 2011).

Hoolimata absoluutväärtuste lahknevusest olid mõõdetud tahma ja modelleeritud PM_{2.5} väärtuste korrelatsioonid märkimisväärsed. Korrelatsioonid olid paremad kütteperioodidel - veebruaris ja novembris. Suvel oli madalamate korrelatsioonide saamine mõistetav, kuna tahma osakaal oli PM_{2.5} hulgas väiksem. Samasuguseid tulemusi andis ka sarnaste asukohatüüpidega seirejaamade ja koolide mõõtmistulemuste võrdlus (Joonis 20). Seega võisid mudelarvutuste statistilist täpsust mõjutada nii tahmamõõtmiste vead kui ka tahma sisaldus tahketes osakestes, kuid võrdlusest seirejaamadega tuli välja, et ka SILAMi enda väljund oli ebatäpne.

Korrelatsioonid olid paremad, kui SILAMi väljundit võrreldi 24 tunni keskmiste mõõtmistulemustega. Põhjuseks võis olla tunnikeskiste üksikute kõrgete kontsentratsioonide mõne tunni võrra vale ajastamine SILAMi poolt. See tingib juba märkimisväärselt kehvema korrelatsiooni kuigi mudeli üldine ennustus võib otsuste tegemiseks siiski anda piisavalt informatsiooni. Sarnast tendentsi on Eesti SILAMi rakenduse puhul märgatud ka varem (Ots *et al.*, 2013).

Samuti paistis, et SILAM alahindas PM_{2.5} saastetaset kõigil mõõtmisperioodidel – suvel keskmiselt 8 korda, talvel keskmiselt 5 korda. Veebruarikuus paistis alahindamine olevat seotud ilmastikuga, kuid hilisematel mõõtmisperioodidel seoseid ei täheldatud. Varasemalt on kaheldud SILAMi piirkihi täpses paksuses (Sofiev *et al.*, 2006). Võimalik, et antud arvutuste puhul oli piirkiht hinnatud tegelikust paksemaks, mistõttu olid kohalike allikate emissioonid paremini hajutatud.

Lämmastikdioksiid NO₂

Nagu ka kirjanduses välja toodud, olid mõõdetud NO₂ kahe nädala keskmised kontsentratsioonid läbi aasta madalamad maal ja tõusid tihedamalt asustatud piirkondade suunas (Sõukand, 2013). NO₂ puhul tuli välja, et mida linnalisem asukoht, seda rohkem SILAM alahindas saastetasemeid. Suurtest keskustest kaugel olevates küldes kaldus SILAM saastetasemeid ülehindama. See kinnitas varasemaid uurimistulemusi ja andis geograafiliselt parema ülevaate (Ots *et al.*, 2013). Mõõtmistulemuste võrdlus SILAMi NO_x tasemetega vähendas alahindamist vaid Tallinnas, kus NO/NO₂ suhe on tugeva liiklussaaste tõttu enim NO kasuks. Samas jäi teatav alahindamine alles ka Tallinnas, muudest kohtadest rääkimata. Seega jäi alahindamise põhjus endiselt suuresti selgusetuks: lämmastiku oksiidide vale proportsioon võib seda seletada vaid osaliselt.

Aasta lõikes olid NO₂ kontsentratsioonid kõrgemad talvel ning madalamad suvel. Üldine saastetaseme langus suvel oli tõenäoliselt tingitud katlamajadest ja olmekütmisest tulenevate

heitmete kevadisest vähenemisest või paremast hajuvusest (EPA United States b; Sõukand, 2013). Tallinna kõrgemad kontsentratsioonid suvel võisid tuleneda tihenenud auto- ja mereliiklusest (EPA United States b).

Seirejaamade tulemuste ja SILAMi väljundi võrdluses tuli samuti välja hooajaline erinevus – korrelatsioonikoefitsiendid olid suvel madalamad kui talvel, kuid läbivalt positiivsed. Samas mudelarvutuste ja koolide mõõtmistulemuste asukohapõhises võrdluses olid tulemused vastupidised (Tabel 1).

Tabel 1 NO₂ SILAMi mudelarvutuste ja koolide mõõtmistulemuste korrelatsioonid asukohapõhises võrdluses

	Mõõtmisperiood, 2012			
	13.02 – 26.02	14.05 – 27.05	27.08 – 09.09	19.11 – 03.12
Korrelatsioon	0,09	0,78	0,68	0,46

Väeeldioksiid SO₂

Nii mõõdetud kui ka ennustatud SO₂ tulemused olid kõrgemad talvisel perioodil. Üldine saastetaseme langus kevadel oli tõenäoliselt tingitud katlamajadest tulenevate heitmete kevadisest vähenemisest või paremast hajuvusest. Maikuu kõrgemate saastetasemete põhjuseks võrreldes augustikuuga võis olla kevadine kütmine (WHO Europe, 2006). Mõnel juhul mõõdeti talvel võrdlemisi kõrgeid saastetasemeid, kuid SILAMi väljund ei tuvastanud üldisest taustast kõrgemaid kontsentratsioone. Talvise perioodi kehvad tulemused olid tingitud SILAMi võrgulahutusest, mis ei ole piisav väiksemates asulates kohalike katlamajade väljatoomiseks. Sarnaselt eelnevate uuringutega olid erinevused suuremad tööstuspiirkondades (Ots *et al.*, 2013). Ka mudelarvutuste ja koolide mõõtmistulemuste asukohapõhises võrdluses oli suvel näha paremaid tulemusi, kui ei toimunud kütmist (Tabel 2).

Tabel 2 SO₂ SILAMi mudelarvutuste ja koolide mõõtmistulemuste korrelatsioonid asukohapõhises võrdluses

	Mõõtmisperiood, 2012			
	13.02 – 26.02	14.05 – 27.05	27.08 – 09.09	19.11 – 03.12
Korrelatsioon	-0,07	0,39	0,53	-0,10

SILAM alahindas mõõdetud SO₂ saastetasemeid keskmiselt üle 2 korra. Ülehindamise juhtumid esinesid pigem riiklikes seirejaamades, mistõttu võis alahindamine olla tingitud koolides kasutatud passiivsete kogujate kehvemast töökindlusest võrreldes pidevseirega (EKUK, 2011). Samas olid

SILAMi modelleeritud tulemuste ja seirejaamade mõõtmistulemuste korrelatsioonid küll positiivsed, kuid pigem madalad.

Kui välja jätta üksikud piigid, olid SO₂ kontsentratsioonid võrdlemisi madalad nagu ka kirjanduse järgi võis eeldada (Sõukand, 2013).

Järeldused

SILAM alahindab süstemaatiliselt PM_{2.5} kontsentratsioone. Kuna varasemate uuringute põhjal on leitud, et SILAMi piirkihi paksus ei pruugi olla adekvaatne, siis tuleks edaspidi uurida, kas alahindamine võib sellest tingitud olla. Korrelatsioonid ööpäeva keskmiste PM_{2.5} tulemustega on palju kõrgemad kui tunnikeskiste tulemuste puhul. Tunnikeskiste üksikute kõrgete kontsentratsioonide mõne tunni võrra vale ajastamine tingib juba märkimisväärselt kehvema korrelatsiooni kuigi mudeli üldine ennustus võib otsuste tegemiseks siiski anda piisavalt informatsiooni.

Pikaajaliste keskmiste puhul kaldub SILAM Eesti tingimustes linnade ja maakohtade NO₂ saastetasemete erinevusi tasandama, modelleerides saasteainete võrdlemisi ühtlast geograafilist levikut. Kuigi enamikes linnastunud piirkondades alahinnatakse kontsentratsioone 2-3 korda, on NO₂ tasemed maapiirkondades esitatud peaaegu täpselt. See uuring kinnitab varasemaid tulemusi, mis viidi läbi üksnes seirejaamade põhjal: mudelarvutuste keskmised leiti linnades olevat liiga madalad (Ots *et al.*, 2013).

SILAMi saastetasemete ühtlustamisele ei ole veel lõplikku seletust. Liiga suur võrgusamm ei saa olla ainukeseks põhjuseks: Tallinna keskosa on piisavalt suur, et hinnata tulemusi 3,3 km lahutusega (v.a. Liivalaia teeäärse seirejaama kontsentratsioone). Väikestes linnades on võrgulahutusest tulenevad erinevused määravamad. Vajalik on suuremate linnade emissioonide allikate andmebaasi redigeerimine. Arvestades, et linnade transpordist tingitud emissioonidest detailse ülevaate saamine on äärmiselt keeruline, võivad emissioonid olla praeguses andmebaasis alahinnatud. Samas on ennustatud piigid puuduliku andmebaasi kohta liiga kõrged, mistõttu peaks üheks põhjuseks olema SILAMi enda viga.

SO₂ puhul annab SILAMi mudelarvutus üle Eesti ühtlase foonikontsentratsiooni. Korrelatsioonid on rahuldavad vaid suvisel perioodil, kui kütmine puudub. Kütteperioodil avaldavad mõju üksikud kõrged tasemed kohalikest katlamajadest, mida ei ole lootust reprodutseerida kolmekilomeetrise võrgulahutusega mudeliga isegi täpsete saasteallika andmete olemasolul.

Tänuavaldused

Täna tehnilise abi eest töötamisel mudeliga SILAM Riinu Otsa ja Ardi Looti TÜ füüsika instituudist ning Marje Pranki ja Mikhail Sofievit Soome Meteoroloogianstituudist.

Kokkuvõte

Töö eesmärgiks oli valideerida mudeli SILAM NO_2 , SO_2 , NH_3 , O_3 ja $\text{PM}_{2.5}$ arvutustulemusi geograafiliselt esinduslike mõõtmistulemuste kaudu ning mudeli parandussoovituste esitamine Eesti olude täpsemaks arvessevõtmiseks.

Mudeli valideerimiseks kasutati kokku 35 mõõtmispunkti üle Eesti. Saasteainete mõõtmised viidi läbi 2012. aastal neljal kahenädalasel perioodil - 13.02 – 26.02, 14.05 – 27.05, 27.08 – 09.09 ja 19.11 – 03.12.

Selgus, et SILAM alahindab süstemaatiliselt $\text{PM}_{2.5}$ kontsentratsioone. Kuna varasemate uuringute põhjal on leitud, et SILAMi piirkihi paksus ei pruugi olla adekvaatne, siis tuleks edaspidi uurida, kas alahindamine võib sellest tingitud olla.

SILAM kaldub NO_2 kahe nädala keskmisi saastetasemeid üle Eesti ühtlustama: linnade kontsentratsioone alahinnatakse, kuid maalähedastes piirkondades esineb kontsentratsioonide ülehindamist. Seega kinnitas see uuring varasemaid tulemusi ja andis laiema geograafilise ülevaate. Täiendavaid uuringuid tuleks läbi viia emissioonide, mudeli omaduste ja võrgusammu pikkuse mõju kohta, et leida ühtlustamise põhjus ja saada täpsemaid modelleerimistulemusi.

SO_2 puhul andis SILAMi mudelarvutus üle Eesti ühtlase foonikontsentratsiooni. Kütteperioodil avaldasid mõju üksikud kõrged tasemed kohalikest katlamajadest, mille ennustamine oli kolmekilomeetrise võrgulahutusega võimatu.

NH_3 ja O_3 mõõtmis- ja modelleerimistulemuste võrdlus kinnitas varasemat kahtlust, et SILAMi väljund on ebatäpne, mistõttu tuleks kontrollida nende saasteainete arvutusmeetodi pädevust ja viia läbi täiendavaid kontrollmõõtmisi.

Summary

A pre-operational validation of Estonian application of SILAM model was performed. A denser network of passive sampler measurements of NO_2 , SO_2 , NH_3 and O_3 and filter measurements of black carbon (BC) was added to the stationary monitoring network.

It appeared that SILAM, in comparison with monitoring stations, underestimated $\text{PM}_{2.5}$ typically by a few times. Previous studies show that SILAM has problems with estimating the correct height of planetary boundary layer. Therefore, further research needs to be conducted to clarify if this might have been the problem.

It was found that SILAM tends to “smooth out” the two-week average pollution levels over the country: urban concentrations were underestimated, whereas concentrations at remote sites were represented fairly or slightly overestimated. Thus, this study maintained the results of a former one and gave broader geographical view on these. The modelled and measured values were reasonably correlated in general. Further research on emissions, model features and resolution effects is needed to clarify the reasons of its “smoothing” behaviour and to develop it for more accurate predictions.

All the predicted two-week average concentrations of SO_2 were rather low. In a few cases rather high concentrations were measured, whereas model didn't predict anything substantially different from usual background. These cases were identified as impact of local point sources (boiler houses, industrial enterprises) that by no means could be predicted by a regional-scale model with 3.3 km resolution.

Comparison of modelled and measured NH_3 and O_3 concentrations confirmed an earlier suspicion that SILAM output is inaccurate. Thus, the method of calculation should be controlled and further measurements are needed to be carried out.

Kirjandus

1. **Ahrens, C. D.**, Essentials of meteorology: an invitation to the atmosphere. West Publishing Company. Minneapolis. (1993)
2. **Alloway, B.J., Ayres, D.C.**, Chemical principles of environmental pollution. Alden Press. Oxford. (1993)
3. **Boeker, E., Van Grondelle, R.**, Environmental physics. Wiley. West Sussex. (1995)
4. **Bradshaw, J., Davis, D., Grodzinsky, G., Smyth, S., Newell, R., Sandholm, S., Liu, S.**, Observed distributions of nitrogen oxides in the remote free troposphere from the NASA global tropospheric experiment programs. Reviews of Geophysics. 38, 1. 61-116. (2000)
5. **Colls, J.**, Air Pollution. Spon Press. London. (2002)
6. **DiGiovanni, F., Fellin, P.**, Transboundary air pollution. In: UNESCO Encyclopedia of Life Support Sciences. <http://www.eolss.net/Sample-Chapters/C09/E6-38A-03-04.pdf> (alla laetud 26.04.2013)
7. **Directive 2004/107/EC** of the European Parliament and of the Council of 15 December 2004 relating to arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air. Official Journal of the European Union. 26.01.2005
8. **Directive 2008/50/EC** of the European Parliament and of the Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe. Official Journal of the European Union. 11.06.2008
9. **ECMWF, SILAM and MATCH (FMI).**
http://gems.ecmwf.int/documents/workdescription/6_SILAM_and_MATCH_FMI.html
(viimati uuendatud 03.08.2005)
10. **Eesti Keele Instituut**, Eesti keele seletav sõnaraamat.
<http://www.eki.ee/dict/ekss/index.cgi?Q=tuul&F=M> (alla laetud 23.03.2013)
11. **EKUK**, Eesti Õhukvaliteedi Juhtimissüsteem. Seire, modelleerimine, infomaterjalid.
<http://www.klab.ee/seire/airviro/> (alla laetud 04.04.2013)
12. **EKUK**, Välisõhu uuringud Ida-Virumaal. (2006).
<http://www.envir.ee/orb.aw/class=file/action=preview/id=434215/aruanne.pdf> (alla laetud 04.04.2013)
13. **EKUK**, Välisõhu saasteaine NO₂ mõõdistused difusioonitorudega 2011. a I, II, III ja IV kvartalis. (2011). http://www.tartu.ee/data/EKUK_Tartuohk_2011.pdf (alla laetud 05.05.2013)
14. **EPA United States a**, Black Carbon. <http://www.epa.gov/blackcarbon/index.html> (viimati uuendatud 30.03.2012)

15. **EPA United States b**, Six Principal Pollutants.
<http://www.epa.gov/airtrends/aqtrnd95/sixpoll.html> (viimati uuendatud 05.01.2012)
16. **EPA United States**, Report to Congress on Black Carbon. (2010).
<http://www.epa.gov/blackcarbon/2012report/fullreport.pdf> (alla laetud 20.04.2013)
17. **Hand, J. L., Copeland, S. A., Day, D. E., Dillner, A. M., Indresand, H., Malm, W. C., McDade, C. E., Moore, Jr, C. T., Pitchford, M. L., Schichtel, B. A., Watson, J. G.**, IMPROVE (Interagency Monitoring of Protected Visual Environments): Spatial and Seasonal Patterns and Temporal Variability of Haze and its Constituents in the United States: Report V. (2011).
http://vista.cira.colostate.edu/improve/Publications/Reports/2011/PDF/IMPROVE_V_FullReport.pdf (alla laetud 25.04.2013)
18. **Huijnen, V., Eskes, H. J., Poupkou, A., Elbern, H., Boersma, K. F., Foret, G., Sofiev, M., Valdebenito, A., Flemming, J., Stein, O., Gross, A., Robertson, L., D'Isidoro, M., Kioutsioukis, I., Friese, E., Amstrup, B., Bergstrom, R., Strunk, A., Vira, J., Zyryanov, D., Maurizi, A., Melas, D., Peuch, V.-H., Zerefos, C.**, Comparison of OMI NO₂ tropospheric columns with an ensemble of global and European regional air quality models. Atmos. Chem. Phys. 10. 3273–3296. (2010)
19. **Issley, S., Lang, E. S.**, Ammonia toxicity. <http://www.emedicine.com/emerg/topic846.htm> (viimati uuendatud 27.06.2011)
20. **International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC)**, Compendium of chemical terminology. Gold book. <http://goldbook.iupac.org/PDF/goldbook.pdf> (viimati uuendatud 19.08.2012)
21. **Jenkin, M. E., Clemitshaw, K. C.**, Ozone and other secondary photochemical pollutants: chemical processes governing their formation in the planetary boundary layer. Atmospheric Environment. 34. 2499-2527. (2000)
22. **Kaasik, M., Sõukand, Ü.**, Osooni, ammooniaagi, vääveldioksiidi ja lämmastikdioksiidi määramine välisõhus passiivsete difusioonkogujatega. Mõõtmisjuhend GLOBE koolidele. (2012). http://www.keskkonnaharidus.ee/public/Juhend_passiivne.pdf (alla laetud 24.04.2013)
23. **Keskkonnainfo**, Välisõhu seire. <http://www.keskkonnainfo.ee/failid/yld/Valisohuseire.pdf> (alla laetud 06.04.2013)
24. **Keskkonnaministeerium**, Välisõhukaitse. <http://www.envir.ee/626> (alla laetud 06.04.2013)
25. **Keskkonnaministri 22. septembri 2004. a määruse nr 120 „Välisõhu saastatuse taseme määramise kord” muutmine.** 15.07.2011. RT I, 12.07.2011, 1.
<https://www.riigiteataja.ee/akt/112072011001> (alla laetud 22.05.2013)
26. **Kikas, Ü.**, Kus elab tahmanägu? Eesti Loodus. 3. 83-85. (1996)

27. **Kikas, Ü., Kütt, K., Peil, I.**, Tahm õhus: mõõtmisjuhend GLOBE koolidele. Tartu Ülikooli Multimeediakeskus. Tartu. (2012)
28. **Krupa, S. V.**, Effects of atmospheric ammonia (NH₃) on terrestrial vegetation: a review. *Environmental Pollution*. 124/2. 179-221. (2003)
29. **Kukkonen, J., Olsson, T., Schultz, D. M., Baklanov, A., Klein, T., Miranda, A. I., Monteiro, A., Hirtl, M., Tarvainen, V., Boy, M., Peuch, V.-H., Poupkou, A., Kioutsioukis, I., Finardi, S., Sofiev, M., Sokhi, R., Lehtinen, K. E. J., Karatzas, K., San José, R., Astitha, M., Kallos, G., Schaap, M., Reimer, E., Jakobs, H., Eben, K.**, A review of operational, regional-scale, chemical weather forecasting models in Europe. *Atmos. Chem. Phys.* 12. 1–87. (2012)
30. **Nieuwstadt, F. T. M.**, Atmospheric boundary-layer processes and influence of inhomogeneous terrain. Raamatus: Gyr, A., Rys, F.S. (Toim.) Diffusion and transport of pollutants in atmospheric mesoscale flow fields. 89-127. (1995)
31. **Ots, R., Loot, A., Kaasik, M.**, A Wintertime Local-to-Regional Scale Test Case Study of SILAM Model. Raamatus: Steyn, D.G., Trini Castelly, S. (Toim.) Air Pollution Modeling and Its Application XXI. NATO Science for Peace and Security Series Series C: Environmental Security. Springer. 4. 539-542. (2012)
32. **Ots, R., Loot, A., Kaasik, M.**, Scale-dependent and seasonal performance of SILAM model in Estonia. Raamatus: Steyn, D.G., Timmermans, R. (Toim.) Air Pollution Modelling and its Application XXII. NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security. Springer. *Avaldamisel*. (2013)
33. **Past, V.**, Tamm, J., Tamm, L., Üldine ja arnorgaaniline keemia X klassile. Koolibri. Tallinn. (1997)
34. **Prank, M., Sofiev, M., Kaasik, M., Ruuskanen, T., Kukkonen, J., Kulmala, M.**, The Origins and Formation Mechanisms of Aerosol during a Measurement Campaign in Finnish Lapland, Evaluated Using the Regional Dispersion Model SILAM. Air Pollution Modeling and Its Application XIX. NATO Science for Peace and Security Series Series C: Environmental Security. Springer. 530-538. (2008)
35. **Saare, K., Maasikmets, M., Teinemaa, E.**, Välisõhu seire linnades 2011. Tallinn. (2012)
36. **Schmeling, M., Aldstadt, J. H.**, Environmental and ecological chemistry - Volume 1. *Fundamental Environmental Chemistry*. (2009)
37. **Seinfeld, J. H., Pandis, S. N.**, Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change. First edition. Wiley. New York. (1998)
38. **Seinfeld, J. H., Pandis, S. N.**, Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change. Second edition. Wiley. New Jersey. (2006)

39. **Seireveeb.** <http://seire.keskkonnainfo.ee/> (alla laetud 04.04.2013)
40. **SILAM.** <http://silam.fmi.fi/> (alla laetud 17.04.2013)
41. **Smith, J.**, Stratospheric Ozone Chemistry. <http://ua.acd.ucar.edu/Presentations/lecture2.pdf> (alla laetud 22.03.2013)
42. **Sofiev, M., Siljamo, P., Valkama, I., Ilvonen, M., Kukkonen, J.**, A dispersion modelling system SILAM and its evaluation against ETEX data. *Atmospheric Environment*. 40. 674–685. (2006)
43. **Sofiev, M., Galperin, M., Genikhovich, E.**, Construction and evaluation of Eulerian dynamic core for the air quality and emergency modelling system SILAM. *Air Pollution Modeling and Its Application XIX. NATO Science for Peace and Security Series Series C: Environmental Security*. Springer. 699–701. (2008)
44. **Sofiev, M., Vira, J., Prank, M., Soares, J., Kouznetsov, R.**, An outlook of System for Integrated modelling of Atmospheric composition SILAM v.5. Raamatus: Steyn, D.G., Timmermans, R. (Toim.) *Air Pollution Modelling and its Application XXII. NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security*. Springer. *Avaldamisel*. (2013)
45. **Sofiev, M., Vankevich, R., Lotjonen, M., Prank, M., Petukhov, V., Ermakova, T., Koskinen, J., Kukkonen, J.**, An operational system for the assimilation of the satellite information on wildland fires for the needs of air quality modelling and forecasting. *Atmos. Chem. Phys.* 9. 6833–6847. (2009)
46. **Sõukand, Ü.**, Osooni (O₃), ammoniaagi (NH₃), vääveldioksiidi (SO₂) ja lämmastikoksiidi (NO₂) määramine välisõhus passiivsete difusioonkogujatega. (2013).
http://www.globe.ee/ohusaaste/wp-content/uploads/2012/01/difusioonkogujad_teoreetiline_osa.pdf (alla laetud 21.04.2013)
47. **Välisõhu saastatuse taseme piir- ja sihtväärtused, saasteaine sisalduse muud piirnormid ning nende saavutamise tähtajad.** 08.07.2011. RT I, 12.07.2011, 3.
<https://www.riigiteataja.ee/akt/112072011003> (alla laetud 24.04.2013)
48. **Wayne, R. P.**, *Chemistry of Atmospheres*, 3rd ed. Oxford University Press. (2000)
49. **Wenig, M., Spichtinger, M., Stohl, A., Held, G., Beirle, S., Wagner, T., Jähne, B., Platt, U.**, Intercontinental transport of nitrogen oxide pollution plumes. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 2. 2151–2165. (2002)
50. **WHO Europe**, *Air quality guidelines: global update 2005*. (2006).
http://www.euro.who.int/_data/assets/pdf_file/0005/78638/E90038.pdf (alla laetud 09.03.2013)

LISA 1

Mõõtmiskohtade koordinaadid

Passiivsed kogujad		
Asukoht	Laiuskraad	Pikkuskraad
Audentese Erakool	59.405833	24.713333
Illi	58.18778	26.42639
Jõgeva Gümnaasium	58.748713	26.391605
Jõhvi Gümnaasium	59.349758	27.416847
Keila Kool	59.308777	24.428611
Kilingi-Nõmme Gümnaasium	58.151588	24.949533
Kääpa Põhikool	57.864166	27.105000
Tartu Kivlinna Gümnaasium	58.380411	26.760516
Lihula Gümnaasium	58.726258	23.905138
Miina Härma Gümnaasium	58.376511	26.707691
Mooste Põhikool	58.159669	27.193416
Muhu Põhikool	58.606194	23.319444
Narva Humanitaargümnaasium	59.393458	28.186119
Paide Gümnaasium	58.890718	25.562266
Palupera Põhikool	58.1154861	26.3336138
Pärnu Vene Gümnaasium	58.375922	24.512125
Rakke Gümnaasium	58.990583	26.232055
Rakvere Reaalgümnaasium	59.347222	26.369472

Rõngu Keskkool	58.147658	26.245386
Saaremaa Ühisgümnaasium	58.259963	22.489502
Sindi Gümnaasium	58.407222	24.653888
Tallinna Reaalkool	59.433763	24.748583
Valga Põhikool	57.778363	26.041113
Viljandi Paalalinna Gümnaasium	58.373813	25.574100
Vormsi Lasteaed-Põhikool	58.991666	23.244166
Võru Kreutzwaldi Gümnaasium	57.847586	27.009513
Liivalaia seirejaam	59.430972	24.760444
Õismäe seirejaam	59.414056	24.64975
Rahu seirejaam	59.445139	24.721917
Kohtla-Järve seirejaam	59.409639	27.278667
Narva seirejaam	59.372194	28.200694
Tartu seirejaam	58.370583	26.734833
Lahemaa seirejaam	59.501861	25.936194
Vilsandi seirejaam	58.37625	21.844611
Saarejärve seirejaam	58.727167	26.503389

Tahmamõõtja		
Asukoht	Laiuskraad	Pikkuskraad
Audentese Erakool	59.404722	24.7125000
Jõgeva Gümnaasium	58.747763	26.3889722

Jõhvi Gümnaasium	59.3498056	27.4159722
Keila Kool	59.3638889	24.4668056
Kilingi-Nõmme Gümnaasium	58.1506139	24.9524528
Kääpa Põhikool	57.8641667	27.1050000
Tartu Kivilinna Gümnaasium	58.3757833	26.7714194
Lihula Gümnaasium	58.6818056	23.8251306
Miina Härma Gümnaasium	58.3764917	26.7092944
Mooste Põhikool	58.1609528	27.1913583
Muhu Põhikool	58.6033333	23.2280556
Narva Humanitaargümnaasium	59.3876306	28.1680056
Paide Gümnaasium	58.8863889	25.5741667
Palupera Põhikool	58.1155555	26.3336138
Pärnu Vene Gümnaasium	58.3759222	24.5121250
Rakke Gümnaasium	58.9915278	26.2310833
Rakvere Reaalgümnaasium	59.3477222	26.3691944
Rõngu Keskkool	58.1492667	26.2473694
Saaremaa Ühisgümnaasium	58.2594694	22.4897361
Sindi Gümnaasium	58.4057056	24.6578778
Tallinna Reaalkool	59.4336750	24.7490389
Valga Põhikool	57.7781944	26.0409556
Viljandi Paalalinna Gümnaasium	58.3718417	25.5735056
Vormsi Lasteaed-Põhikool	58.9916667	23.2441667

Võru Kreutzwaldi Gümnaasium	57.8474167	27.0093194
Liivalaia seirejaam	59.430972	24.760444
Õismäe seirejaam	59.414056	24.64975
Rahu seirejaam	59.445139	24.721917
Kohtla-Järve seirejaam	59.409639	27.278667
Narva seirejaam	59.372194	28.200694
Tartu seirejaam	58.370583	26.734833
Lahemaa seirejaam	59.501861	25.936194
Vilsandi seirejaam	58.37625	21.844611
Saarejärve seirejaam	58.727167	26.503389

LISA 2

Konverentsi „15th International Conference on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes“ (Madrid, 5. – 9. mai 2013) elektroonilises preprintide kogumikus selle töö tulemuste põhjal ilmunud artikkel.

Varsti saadaval aadressil <http://www.harmo.org> (ettekande konverentsil pidas Marko Kaasik).

OPERATIONAL VALIDATION OF SILAM MODEL IN DIFFERENTLY INHABITED AREAS

Ketlin Reis¹, Marko Kaasik¹, and Veljo Kimmel²

¹Institute of Physics, University of Tartu, Tartu, Estonia

² Department of Environmental Protection, Estonian University of Life sciences, Tartu, Estonia

Abstract: A pre-operational validation of Estonian application of SILAM model is performed. A denser network of passive sampler measurements of NO₂ and SO₂ and filter measurements of black carbon (BC) is added to the stationary monitoring network. It is found that SILAM tends to “smooth out” the two-week average pollution levels over the country: urban concentrations are underestimated, whereas concentrations at remote sites are represented fairly or slightly overestimated. Thus, this study maintains the results of a former one and gives broader geographical view on these. The modelled and measured values are reasonably correlated in general. Further research on emissions, model features and resolution effects is needed to clarify the reasons of its “smoothing” behaviour and to develop it for more accurate predictions.

Key words: pre-operational validation, SILAM, nitrogen dioxide, sulphur dioxide, particulate matter, black carbon.

INTRODUCTION

This paper is intended to validate the local application of air quality model SILAM running in pre-operational mode in Estonian Institute of Meteorology and Hydrology (<http://meteo.physic.ut.ee/silam>). Regular air quality monitoring network of Estonia is geographically not representative enough. Although 9 stations may seem enough for a country of 45000 km² by area, the network is designed for quantifying the public health risks, rather than to understand the geographical spread of pollutants. Three stations are located in capital city Tallinn and three in next largest towns. Two of three rural stations are in North-Eastern part of the country to detect the pollution from oil-shale-driven industrial complex. A maritime station is in far west on a small islet Vilsandi near island Saaremaa. Thus, most of stations are concentrated in North Estonia and no background stations are located in the southern part (Figure 1). In this study the data from monitoring network are combined with passive samplers of NO₂ and SO₂, and black carbon (BC) filter measurements in small towns and villages. These measurements were carried out by students of secondary schools and basic schools under supervision of their teachers and quality control by University of Tartu, within the GLOBE Estonia environmental measurements' programme (<http://www.globe.ee/>).

METHODS

Measurements

The map of measurement sites is given in Figure 1. In total, the passive samplers and filter measurements of BC were used at 26 sites. The sites were chosen to represent the territory different inhabitation types. The classification of inhabitation types is somewhat subjective. In Estonia, the small villages have well below thousand inhabitants, boroughs about a thousand, small towns a few thousands to about 20 thousands. Medium-sized towns Narva, Kohtla-Järve and Pärnu fit between 40000 and 70000, Tallinn (400000) and Tartu (100000) are classified as cities. For comparison with sampling sites, the monitoring stations are classified as following: one of stations in Tallinn (the Liivalaia street station) and Tartu station in category 1 (city), two stations in Tallinn (Rahu and Öismäe), Kohtla-Järve and Narva in category 2 (city outskirts or medium-sized town), rural station Saarejärve in category 5 (small village) and background stations Lahemaa and Vilsandi in category 6 (uninhabited).

The samples of NO₂ and SO₂ (passive samplers) and BC were taken during four two-week campaigns - 13.02 – 26.02, 14.05 – 27.05, 27.08 – 09.09 and 19.11 – 03.12 in 2012. The February and November – December campaigns belong to intense heating season, whereas the May and August-September campaigns took place in warm season, when no substantial domestic heating is expected. One set of passive NO₂ and SO₂ samplers was exposed during each campaign, thus the average concentration are measured only. The samplers were manufactured and analysed in internationally certified laboratory of Estonian Environment Research Centre (EERC) in Tartu. The filters of BC were changed, depending on their darkening, but typically each day. The concentration estimates were based on darkening of the filter, measured with photometer. Thus, we have a more detailed set of BC measurements, resolving the changes during each campaign. On the other hand, the NO₂ and SO₂ sampling results are directly comparable with two-week averages from monitoring stations and output of SILAM, whereas BC is directly neither forecasted by SILAM, nor measured in monitoring stations – both these rely on standard aerosol fractions PM_{2.5} and PM₁₀. However, we expect that often, related with combustion of fuels, the BC is correlated with total mass of particulate matter.

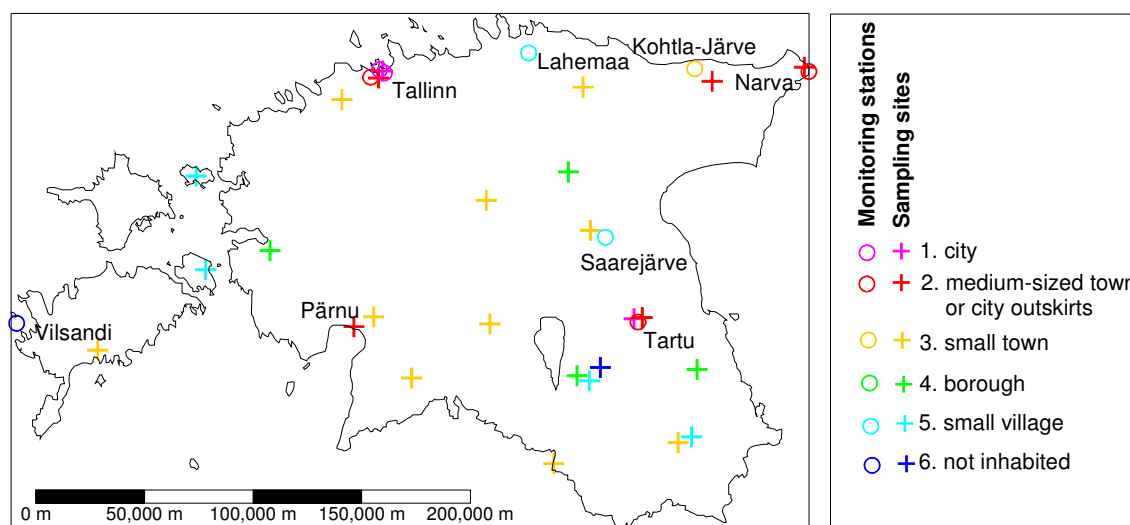


Figure 2. Locations of monitoring stations and sampling sites.

Modelling

The SILAM model (Sofiev et al., 2008) is running in pre-operational mode in Estonian Institute of Meteorology and Hydrology for Eastern Baltic domain (Estonia, Latvia, Southern Finland, adjacent areas of Russia, Lithuania and Baltic Sea) with horizontal grid resolution 3.3 km. The applied version 5.2 includes basic acid chemistry and aerosol formation. The pre-operational runs apply a detail database of pollution sources within in Estonia that originates from Estonian Centre of Environment Research (see Ots et al., 2013) and is driven by ETB-HIRLAM meteo from EMHI. For surrounding areas the TNO MACC database (resolution 7 km) is applied. The air pollution boundary fields originate from European SILAM runs in Finnish Meteorological Institute. Since this pre-operational configuration applies from July 2012 only, the simulations for first two campaigns, February and May, are made with same grid resolution in the domain of Estonia, boundary fields in North Europe generated by SILAM driven by ETA_HIRLAM, setup details see (Ots et al., 2013). Differences in setup from the pre-operational one are expected not substantially affect the results.

RESULTS

Black carbon and particulate matter

As it was expected, the modelled PM_{2.5} concentrations are much higher than measured BC concentrations. Typical differences are 5 – 10 times, but in summertime in rural sites these values are often in same size order. However, it appears that SILAM, in comparison with monitoring stations, underestimates PM_{2.5} typically by a few times. Thus, comparing the BC measurements with close monitoring sites, the fraction of BC is typically 2 – 5%. Despite discrepancies in absolute values, the correlations between modelled and measured values are remarkable, referring to rather adequate description of origins and conditions for PM pollution episodes, Figure 2. The measured and modelled values are better correlated during the heating period. Lower correlations in summer are expected, as the combustion emissions, responsible for most of BC, are lower. Somewhat surprisingly, the BC measurements are somewhat better correlated with model estimations than PM_{2.5}

measurements. The reason may be in database of emissions: no wind-blown dust neither from agricultural areas, nor from roads is included. Thus, combustion emissions are dominating.

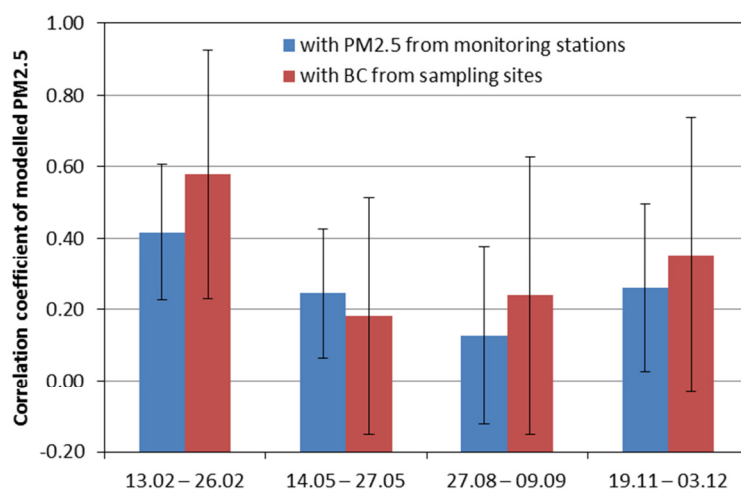


Figure 2. Linear correlations (averages and standard deviations) of PM2.5 concentrations predicted by SILAM with (i) PM2.5 measured in monitoring sites and (ii) BC measured in sampling network. In total 7 valid monitoring stations and 22 – 25 BC sampling sites are applied.

Gaseous admixtures

The best overall fit of modelled *vs.* measured concentrations of nitrogen dioxide is found weakly non-linear: there is a tendency of stronger underestimation of high concentrations (Figure 3). Comparing the measurement campaigns, the data are obviously inhomogeneous: in cold season the concentrations are higher and somewhat better represented by model than in warmer one. Despite general underestimation, there is a positive intercept in quadratic fit – SILAM gives a steady background about 1 – 1.5 μgm^{-1} that is not always the case in warm season measurements.

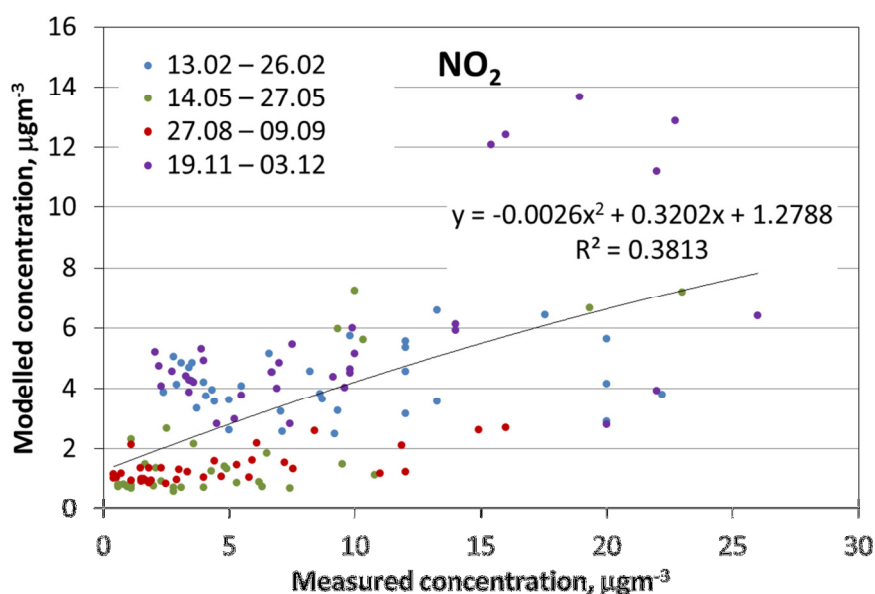


Figure 3. Scatterplot of modelled and measured concentrations of NO₂. Each dot represents a two-week average concentration (either from passive sampling or monitoring station). Four campaigns are distinguished by colours.

The sulphur dioxide modelling-measurement comparison (Figure 4) is so heavily scattered that no meaningful regression is available. However, the main feature is similar to nitrogen dioxide: higher concentrations in cold season, both measured and predicted. The minimal levels are nearly 0.2 μgm^{-1} in both measured and modelled

data. In a few cases rather high concentrations are measured, whereas model doesn't predict anything substantially different from usual background. These cases are identified as impact of local point sources (boiler houses, industrial enterprises) that by no means can be predicted by a regional-scale model with 3.3 km resolution.

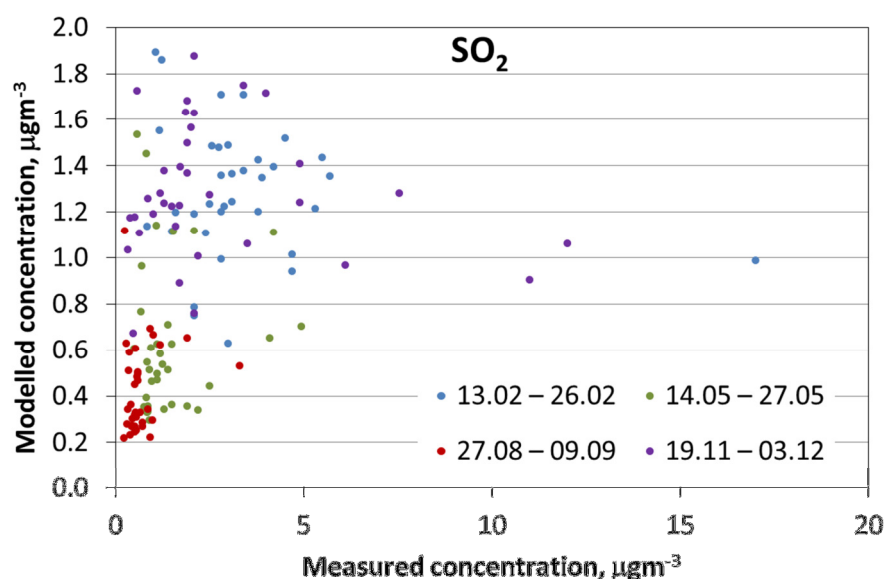


Figure 4. Scatterplot of modelled and measured concentrations of SO₂. Each dot represents a two-week average concentration (either from passive sampling or monitoring station). Four campaigns are distinguished by colours.

Despite worse representation of absolute values, the model gives meaningful site-wise linear correlations with measured concentrations in warm season (Table 1). In cold season the correlations do not exist in fact, except for NO₂ in late autumn. Splitting the samples by measurement site types (see Figure 1) and averaging over both sampling campaigns and sites within each type, a clear trend for NO₂ appears: substantial underestimation for heavily urbanised areas and slight overestimation for background sites. SO₂ is slightly underestimated everywhere, not counting the severely underestimated “borough” type 3, where the reason is identified as sharp impact of a local boiler house in one of sites out of four, and the remote background sites (one passive sampling and two monitoring stations), where the averages fit nearly perfectly. However, all the two-week average concentrations of SO₂ are rather low, including the highest one in mentioned site, 17 µgm⁻³.

Table 1. Correlation coefficients between modelled and measured site-wise values in passive sampling campaigns.

Campaign,		
2012	NO ₂	SO ₂
13.02 – 26.02	0.09	-0.07
14.05 – 27.05	0.78	0.39
27.08 – 09.09	0.68	0.53
19.11 – 03.12	0.46	-0.10

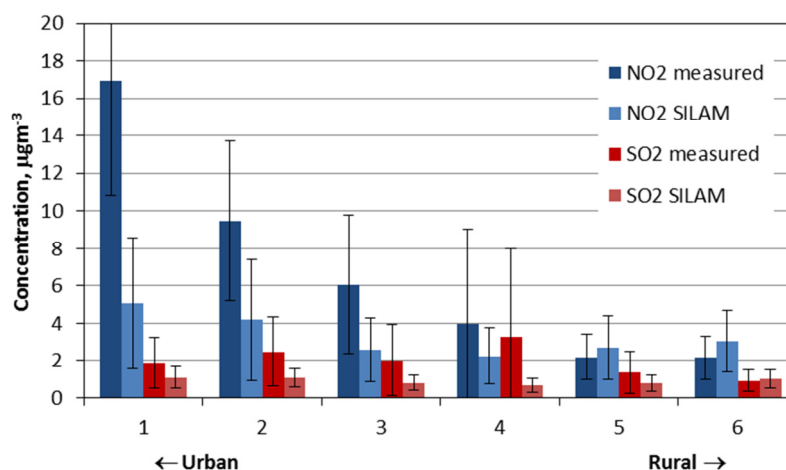


Figure 5. Average concentrations and site-wise standard deviations of measured and modelled NO₂ and SO₂ concentrations (passive sampling sites, plus monitoring stations) in differently inhabited areas (see Figure 1 for classification).

CONCLUSIONS

In terms of long-term average concentrations, the Estonian application of SILAM tends to “smooth out” the urban-rural differences, producing a rather uniform geographical distribution of pollutants. Although in most urbanised sites the concentrations are underestimated by factor 2 or 3, the low levels of NO₂ and SO₂ in rural and remote sites are reproduced nearly perfectly. This study is maintaining the results of an earlier one based on monitoring sites only: the average modelled values in cities were found too low, however the peak levels during stagnant atmospheric conditions were reproduced fairly (Ots et al., 2013).

The reasons of “smoothing behaviour” of Estonian SILAM application are not completely understood yet. Grid cell size cannot be the single reason of that: central part of Tallinn is big enough to be resolved by 3.3 km resolution, except one street station. In small towns the grid resolution effect must be more decisive. Critical revision of urban emission data is needed – considering that detail emission inventory of city traffic is an extremely complicated task, the emissions may be underestimated in current database. On the other hand, formerly tested peak levels are too high in respect to average values, which is most likely a feature of the model.

ACKNOWLEDGEMENTS

This study is funded by Estonian Research Council, Targeted Financing Project SF0180038s08 and research grant No. 8795, also supported by the EU Regional Development Fund, Environmental Conservation and Environmental Technology R&D Programme project BioAtmos (3.2.0802.11-0043). Authors are thankful to Mikhail Sofiev and Marje Prank (FMI), Riinu Ots (University of Tartu and Edinburgh University) and Ardi Loot (University of Tartu) for consultations on SILAM model, and to Ülis Sõukand from EERC for advice in methods of passive sampling. The manufacturing and chemical analysis of passive samplers was funded by Estonian Environmental Investment Centre (project measurement and investigation of air pollution in Estonia, GLOBE Estonia).

REFERENCES

- Ots, R., Loot, A., Kaasik, M., 2013: Scale-dependent and seasonal performance of SILAM model in Estonia. In: NATO Science for peace and security Series C: Environmental Security, Air pollution modelling and its application, XXII. Springer, Dordrecht, in press.
- Sofiev, M., Galperin, M., and Genikhovich, E., 2008: Construction and evaluation of Eulerian dynamic core for the air quality and emergency modelling system SILAM, In: Borrego, C. and Miranda, A. I. (Eds.), NATO Science for peace and security Series C: Environmental Security, Air pollution modelling and its application, XIX. Springer, Dordrecht, 699–701.

Lihthitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks

Mina Ketlin Reis (sünnikuupäev: 24.10.1988)

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihthitsentsi) enda loodud teose „Kogu Eestit katva gaasiliste saasteainete ja tahma mõõtmiste võrdlus mudeli SILAM tulemustega“, mille juhendajad on Marko Kaasik ja Veljo Kimmel,
 - 1.1.reprodutseerimiseks säilitamise ja üldsusele kättesaadavaks tegemise eesmärgil, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace-is lisamise eesmärgil kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni;
 - 1.2.üldsusele kättesaadavaks tegemiseks Tartu Ülikooli veebikeskkonna kaudu, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace'i kaudu kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni.
2. olen teadlik, et punktis 1 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.
3. kinnitan, et lihthitsentsi andmisega ei rikuta teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse seadusest tulenevaid õigusi.

Tartus, **24.05.2013**